

# THÈSE

présentée à la

Faculté des Sciences d'Orsay

Université de Paris

pour obtenir

Le Grade de Docteur ès Sciences Physiques

Laboratoire AIME COTTON C.N.R.S.

par

Raymond VETTER

SUJET de la THESE : Utilisation d'un laser monomode comme appareil d'analyse  
à haute résolution. Etude du déplacement isotopique  
du xénon.

---

Soutenue le 16 Juin 1970 devant la commission d'examen

M. P. JACQUINOT.....Président

MM. A. KASTLER.....}  
J. BROCHARD.....} Examineurs  
R. CHABBAL.....}  
R. BERNAS.....}



# THÈSE

présentée à la  
Faculté des Sciences d'Orsay  
Université de Paris

pour obtenir

Le Grade de Docteur ès Sciences Physiques

Laboratoire AIME COTTON C.N.R.S.

par

Raymond VETTER

SUJET de la THESE : Utilisation d'un laser monomode comme appareil d'analyse  
à haute résolution. Etude du déplacement isotopique  
du xénon.

---

Soutenue le 16 Juin 1970 devant la commission d'examen

M. P. JACQUINOT....Président

MM. A. KASTLER.. . . . }  
J. BROCHARD..... } Examineurs  
R. CHABBAL..... }  
R. BERNAS..... }





Digitized by the Internet Archive  
in 2026

[https://archive.org/details/IA41552004\\_0001](https://archive.org/details/IA41552004_0001)



## CHAPITRE I - INTRODUCTION

---

Au cours des dernières années, les progrès réalisés en spectroscopie instrumentale ont été considérables si bien qu'il devient nécessaire aujourd'hui d'améliorer la résolution effective au niveau de la source plutôt qu'au niveau de l'appareil résolvant. Avec les premiers laser à gaz, est apparu en 1960 un nouveau type de source lumineuse dont les propriétés de luminosité et de cohérence peuvent être utilisées pour étendre le champ d'application de la spectroscopie atomique, par un élargissement du domaine spectral et par une augmentation de la résolution effective.

Pour cela les expérimentateurs ont mis au point des méthodes nouvelles dont l'application se trouve limitée à des problèmes bien particuliers en raison du petit nombre des transitions laser. Au laboratoire Aimé-Cotton, depuis la création en 1964 d'un groupe de spectroscopie laser, les recherches ont été orientées suivant deux directions principales :

- recherche de nouvelles transitions, mesure précise de leur longueur d'onde,
- analyse à haute résolution des transitions laser connues, essentiellement celles des gaz rares, en émission continue.

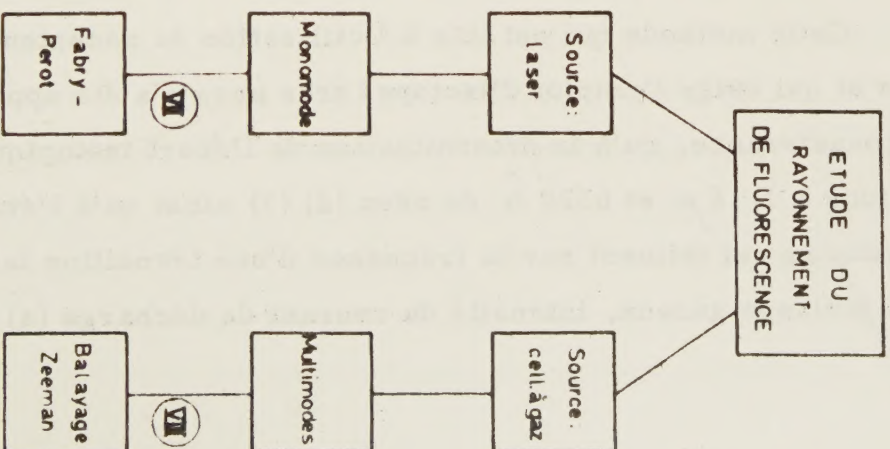
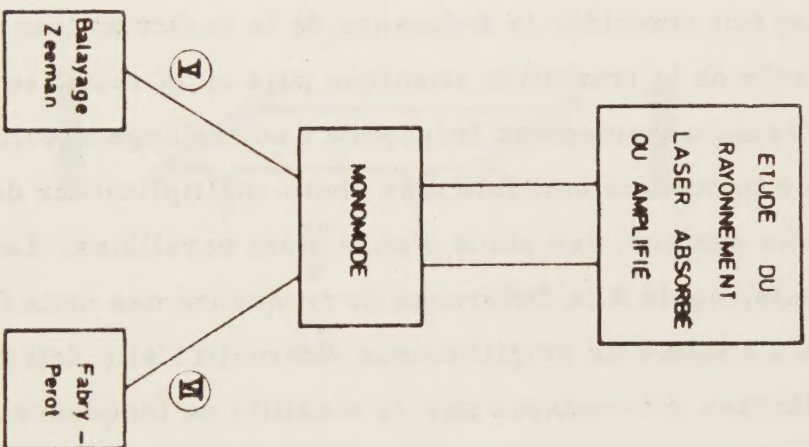
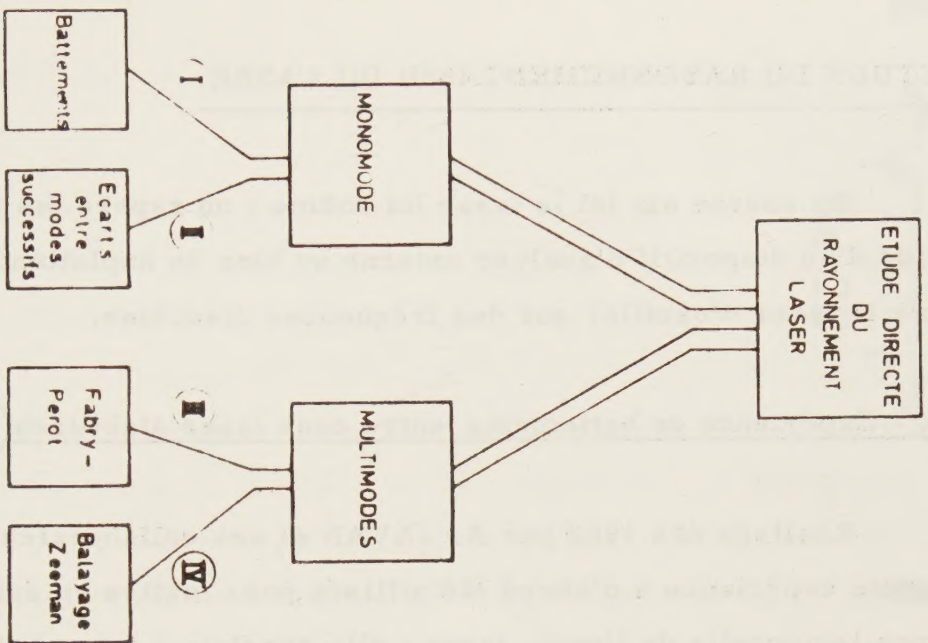
En vue de l'analyse d'un nombre aussi élevé que possible de transitions, trois expériences ont été réalisées ; leur objectif était l'étude des structures hyperfines et des déplacements isotopiques. Nous allons décrire ici le principe et la réalisation de deux d'entre elles et exposer les résultats auxquels nous sommes parvenus concernant le déplacement isotopique. Comme nous le verrons, ces deux méthodes nouvelles peuvent être appliquées à d'autres problèmes tels que la mesure des déplacements par pression, l'analyse directe des profils de raie en émission induite ou en absorption. Afin de les situer, nous allons décrire les expériences de spectroscopie laser à haute

résolution réalisées dans d'autres laboratoires et qui, en plus de l'analyse de structures hyperfines et de déplacements isotopiques, permettent l'étude de l'effet Zeeman et la mesure de la durée de vie des niveaux.

Plutôt que de présenter ces expériences dans l'ordre chronologique ou de les classer suivant un critère unique, il nous a semblé intéressant d'en faire ressortir quelques propriétés communes, par exemple :

- la nature de la source lumineuse qui est le laser lui-même ou au contraire une cellule à gaz excitée par une décharge et traversée par un rayonnement laser,
- la nature du rayonnement étudié qui est soit le rayonnement issu du laser, soit le rayonnement absorbé, ou amplifié à la même longueur d'onde, soit le rayonnement de fluorescence provoqué par l'effet laser,
- le caractère monochromatique de l'onde laser, la cavité pouvant osciller sur un seul mode ou au contraire sur un nombre élevé de modes,
- le procédé d'analyse des fréquences. Pour l'essentiel, quatre procédés ont été utilisés :
  - par battements entre deux fréquences monochromatiques,
  - par balayage continu de la longueur de la cavité du laser et mesure de l'intervalle entre les modes successifs,
  - à l'aide d'un étalon Fabry-Perot externe,
  - par balayage Zeeman.

Selon la nature du rayonnement étudié, il est possible de classer les diverses expériences de spectroscopie laser à haute résolution en trois groupes. Nous allons les décrire successivement en insistant sur leur application à la mesure des structures hyperfines et des déplacements isotopiques.



## I - ETUDE DU RAYONNEMENT ISSU DU LASER

La source est ici le laser lui-même : on repère les fréquences à l'aide d'un dispositif d'analyse externe ou bien en exploitant la propriété qu'a le laser d'osciller sur des fréquences discrètes.

### I - A - Expérience de battements entre deux laser stabilisés I

Réalisée dès 1962 par A. JAVAN et ses collaborateurs au M.I.T. (1), cette expérience a d'abord été utilisée pour mettre en évidence la cohérence temporelle de l'onde laser : elle consiste à faire battre les faisceaux monochromatiques issus de deux laser distincts (fig. 1). En premier lieu, on fait coïncider la fréquence de la radiation laser avec la fréquence centrale de la transition atomique puis on la stabilise à l'aide d'un dispositif d'asservissement en fréquence ; on mélange ensuite les deux faisceaux sur la surface sensible d'un photo-multiplicateur dont ils couvrent la même surface, les plans d'onde étant parallèles. La fréquence des battements, égale à la différence de fréquence des deux faisceaux, est mesurée à l'aide d'un amplificateur alternatif : elle doit être comprise entre deux limites déterminées par la stabilité en fréquence des laser et par le temps de réponse du récepteur optique, au mieux de l'ordre de  $10^{-9}$  s.

Cette méthode qui est liée à l'utilisation de récepteurs optiques rapides et qui exige l'emploi d'isotopes très purs n'a été appliquée, à notre connaissance, qu'à la détermination de l'écart isotopique dans les transitions à  $1,15\ \mu$  et  $6328\ \text{\AA}$  du néon (2) (3) ainsi qu'à l'étude des divers facteurs qui influent sur la fréquence d'une transition laser : pression du mélange gazeux, intensité du courant de décharge (4) (5).

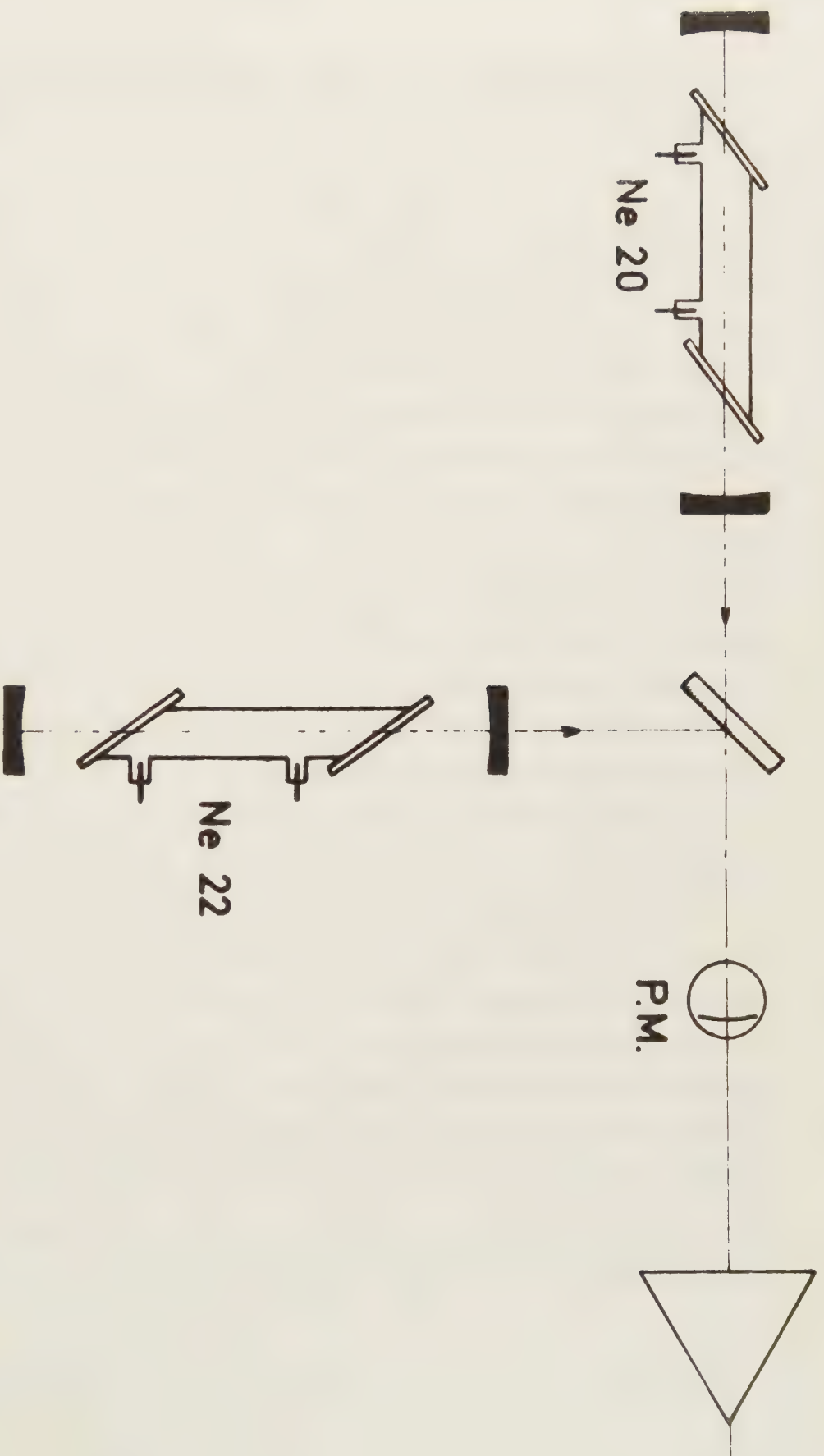


Fig.1 Expérience de battements.  
d'après A. JAVAN et coll. (2)

I - B - Autoexploration d'une cavité laser avec excitation alternée des isotopes. (II)

Le principe de cette expérience, purement optique, repose sur la propriété suivante : la fréquence et l'intensité de l'oscillation laser sont fonction de la différence de marche optique qui existe dans la cavité. Supposons qu'un laser oscille à chaque instant sur un seul mode de vibration T.E.M.  $k, 0, 0$  et qu'il ne contienne qu'un seul isotope, pur et sans structure. Si l'on diminue continuellement la longueur de la cavité d'une demi-longueur d'onde, la raie laser - monochromatique - décrit un certain profil spectral  $I(\nu - \nu_0)$  symétrique par rapport à la fréquence centrale  $\nu_0$  de la transition atomique et dont la largeur est de l'ordre de grandeur de la largeur de la transition atomique. Si l'on diminue la longueur de la cavité d'une quantité bien supérieure, la raie laser décrit les modes successifs T.E.M.  $k, 0, 0, k - 1, 0, 0, k - 2, 0, 0, \dots$ , l'écart entre deux modes successifs permet d'étalonner l'échelle des fréquences de résonance de la cavité.

Comme nous le verrons cette expérience, de principe très simple, n'est pas utilisable directement pour la mesure des écarts isotopiques ou des structures hyperfines. Nous avons proposé en 1966 (6) une méthode de mesure qui en dérive dans laquelle les sources contenant les isotopes à étudier sont séparées et excitées alternativement au cours du balayage de la cavité. Nous l'avons appliquée à la mesure des écarts isotopiques dans six transitions infrarouges de l'argon et dans vingt transitions infrarouges du xénon puis nous avons abordé l'étude des déplacements par pression. Le principe et la réalisation de l'expérience, les résultats que nous avons obtenus sont exposés au chapitre II.

I - C - Analyse des transitions laser multimodes à l'aide d'un étalon Fabry-Perot (III)

Il s'agit ici d'analyser à l'aide d'un étalon Fabry-Perot le profil des raies émises par un laser de grande longueur. L'émission se fait sur des fréquences discrètes très rapprochées correspondant aux modes de vibration T. E. M.  $k, m, n$ , de la cavité ; lorsqu'ils sont en nombre suffisant, leur écart de fréquence est en général suffisamment petit devant la fonction d'appareil de l'étalon Fabry-Perot pour que le profil enregistré diffère peu de l'enveloppe des modes et soit centré sur la transition atomique.

Cette méthode présente les mêmes caractéristiques globales que la méthode d'analyse au Fabry-Perot d'une source classique ; elle est applicable à la mesure des structures hyperfines et des déplacements isotopiques à condition que les composantes soient résolues dans la source. En raison d'effets non linéaires, l'intensité des composantes ne correspond pas à l'intensité théorique et des composantes faibles, en compétition avec des composantes fortes, n'apparaissent pas. Quelques mesures de déplacement isotopique ont été faites, soit dans le visible (7) (8), soit dans l'infrarouge (9) . Au laboratoire Aimé-Cotton, S. LIBERMAN a mesuré la structure hyperfine, due à l'isotope 129 du xénon, de vingt transitions infrarouges (10). L'étude de l'isotope 131 est en cours. L'association d'un étalon Fabry-Perot et d'un laser a par ailleurs reçu de nombreuses applications dans la détermination des caractéristiques de l'effet laser ; étude des modes de vibration par exemple (11)(12).

I - D - Expérience de résonance entre les modes de vibration et les sous-niveaux. Zeeman d'une transition laser (IV)

On considère ici le comportement d'une transition laser entre

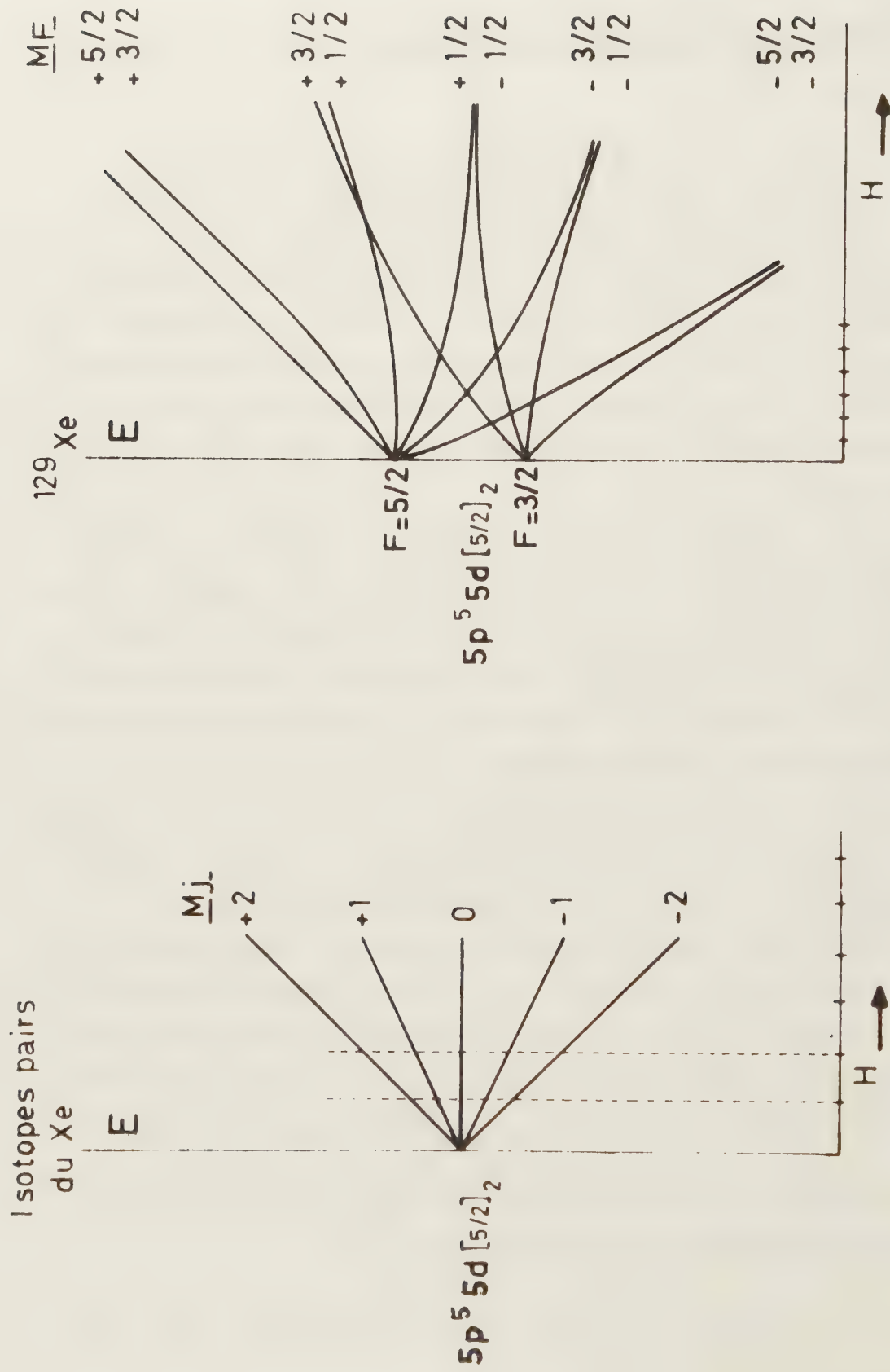


Fig.2 Structure Hyperfine de  $^{129}\text{Xe}$ .  
d'après A.JAVAN et coll. (13)

deux niveaux dont chacun présente une structure serrée - sous-niveaux Zeeman par exemple - lorsque le champ électromagnétique qui règne dans la cavité est lui-même composé de plusieurs fréquences très rapprochées correspondant aux modes de vibration de la cavité. Le couplage entre le champ et l'oscillation laser est fonction de la séparation entre les sous-niveaux Zeeman et passe par un maximum lorsque celle-ci devient égale à l'écart entre les modes : l'intensité du laser passe alors par un maximum suivant une courbe de résonance dont la largeur est de l'ordre de grandeur de la largeur naturelle de la transition. Cet effet a été observé par JAVANet ses collaborateurs (13) sur la transition à  $3,36 \mu$  du xénon, avec un laser multimodes plongé dans un champ magnétique axial d'intensité variable ; la résonance est due dans ce cas au niveau supérieur  $5p^5 5d \left[ \frac{5}{2} \right]_2$  de la transition dont la durée de vie est bien plus grande que celle du niveau inférieur.

Lorsque le laser contient un seul isotope pair et que le champ magnétique est faible, la règle de sélection  $|\Delta M_j| = 2$  autorise les transitions entre trois paires de sous-niveaux Zeeman à des fréquences identiques (fig. 2). Il en est de même lorsque le laser contient l'isotope 129 du xénon, de spin nucléaire  $I = 1/2$ . Au contraire, lorsque le champ magnétique devient élevé, les résonances ne sont plus superposées : l'application de la relation de Breit-Rabi permet alors de calculer la structure hyperfine en champ nul et la valeur du facteur de Landé du niveau supérieur de la transition. L'étude des courbes de résonance permet d'évaluer la largeur naturelle du niveau supérieur de la transition.

## II - ABSORPTION OU AMPLIFICATION D'UN FAISCEAU LASER V VI

Dans ce type d'expérience, la source est un tube à décharge contenant le gaz à étudier et traversé par un faisceau laser monochromatique. Suivant les conditions physiques de la décharge, le faisceau

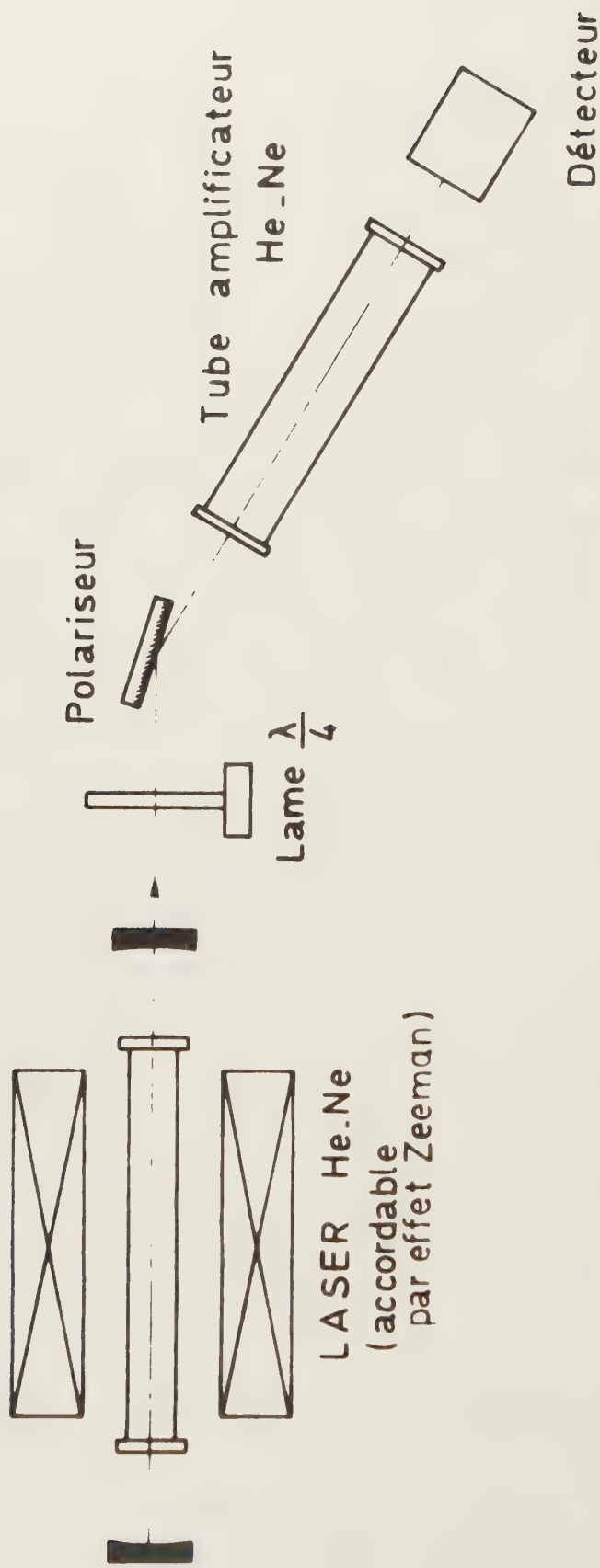


Fig. 3 Amplification d'un faisceau laser à  $3,39\mu$ .  
d'après K.SAKURAI et coll. (17)

est soit absorbé, soit amplifié à la même longueur d'onde ; si par un procédé quelconque, on fait varier la fréquence de l'onde laser, on enregistre le profil d'absorption ou d'amplification de la raie. Dans l'état actuel des techniques laser, le champ d'application de cette méthode est nécessairement limité à des domaines étroits de longueur d'onde situés autour des raies laser ; par contre, étant données la finesse et l'intensité de la raie excitatrice, l'absorption ou l'amplification se font dans les meilleures conditions et l'on peut considérer que le profil enregistré n'est pas altéré par une fonction d'appareil.

Deux types de balayage ont été proposés :

- le premier, mis au point par H. J. GERRITSEN et M. E. HELLER (14) utilise l'effet Zeeman pour déplacer et pour calibrer la fréquence de l'onde laser excitatrice ; la plage de balayage ainsi obtenue est de l'ordre de 100 mk ( $1\text{mk} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ , il correspond à un intervalle de fréquence de 30 MHz). Les principales applications ont trait à l'étude en absorption de structures moléculaires dans l'infrarouge (15) (16) ainsi qu'à la mesure de l'écart isotopique du néon dans la transition à  $3,39 \mu$  (17) (fig. 3) (18).
- le deuxième type de balayage que nous avons proposé en 1966 (19), consiste à déplacer la raie laser dans le profil spectral de la transition atomique sur les modes successifs T. E. M.  $k, 0, 0, k - 1, 0, 0, \dots$ , en diminuant continuellement la longueur de la cavité laser. Le contrôle des fréquences est obtenu à l'aide d'un étalon Fabry-Perot sphérique. La plage de balayage est plus réduite - inférieure à 10 mk - mais le contrôle de l'intensité et de la fréquence de l'onde incidente est plus satisfaisant.

A partir de ce principe nous avons mis au point une méthode d'analyse qui permet la mesure des écarts isotopiques et des structures hyperfines ainsi que l'analyse directe des profils de raie en absorption

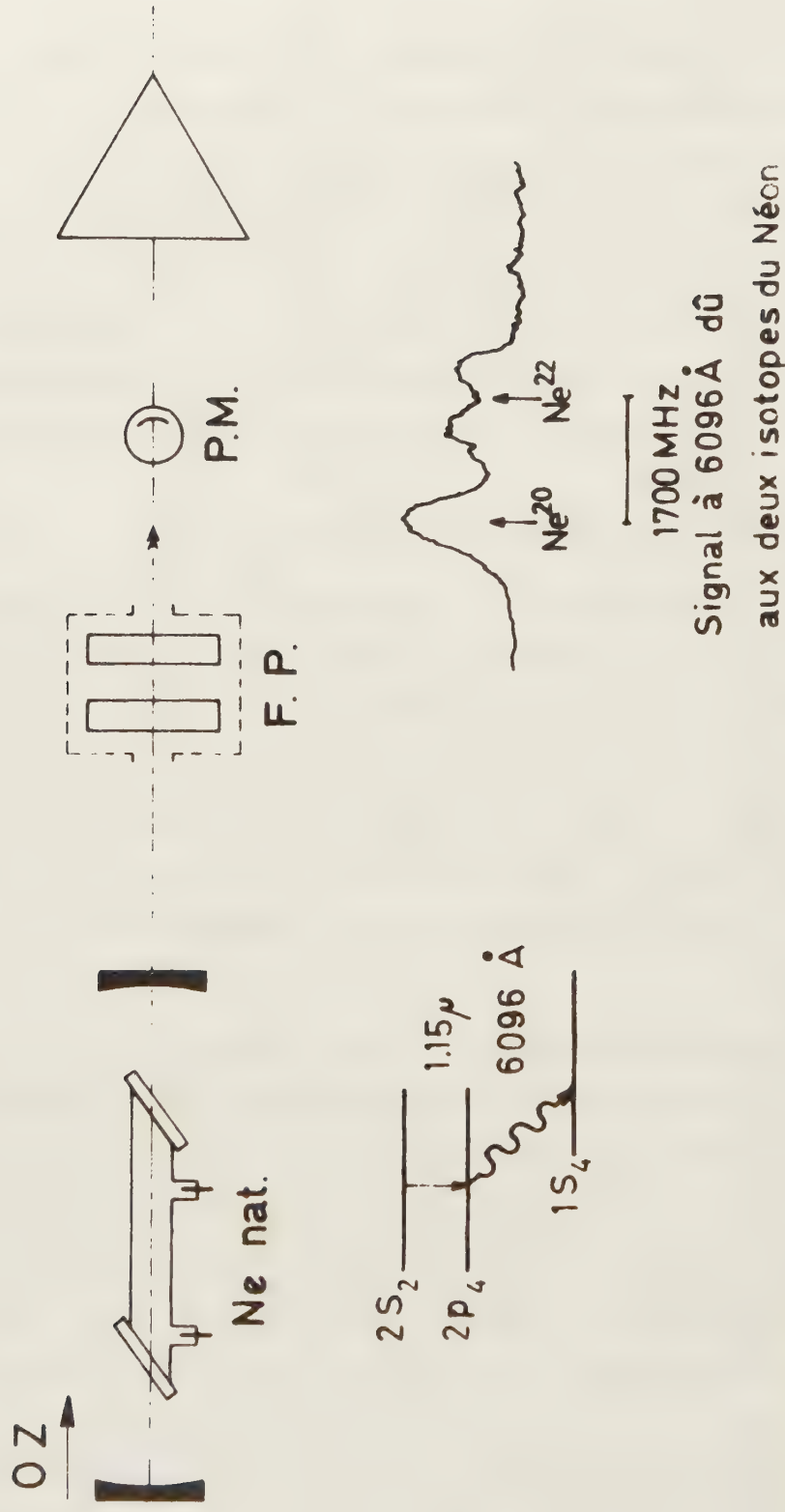


Fig.4 Analyse directe du rayonnement de fluorescence.  
d'après A. JAVAN et coll. (24)

et en émission induite ; les divers détails de sa réalisation et les résultats que nous avons obtenus sont exposés au chapitre III <sup>\*</sup>.

### III - ETUDE DU RAYONNEMENT DE FLUORESCENCE

---

On étudie le rayonnement de fluorescence provoqué par l'effet laser, soit dans le laser lui-même, soit dans une cellule à gaz, placée à l'intérieur ou à l'extérieur de la cavité laser, d'où deux types d'expériences nettement distinctes dans leur principe.

#### III - A - Analyse directe du rayonnement de fluorescence (VII)

Cette expérience suggérée par J.A. WHITE en 1965 (23), consiste à observer le rayonnement de fluorescence issu d'un niveau quand il est surpeuplé par une transition laser ; elle a été réalisée par JAVAN et ses collaborateurs qui l'ont appliquée à la détermination de l'écart isotopique dans les transitions à  $1,15\mu$  ( $2s_2 - 2p_4$ ) et à  $6096\text{ \AA}$  ( $2p_4 - 1s_4$ ) du néon (24) (fig. 4).

Soient  $\nu_0$  la fréquence centrale de la transition laser à  $1,15\mu$  et  $\nu'_0$  la fréquence centrale de la transition spontanée à  $6096\text{ \AA}$  émise par le tube à décharge du laser à travers l'un des miroirs de la cavité. On observe, à l'aide d'un étalon Fabry-Perot la modification du profil spectral à  $6096\text{ \AA}$  quand se produit l'effet laser à  $1,15\mu$  : elle est due aux changements de population qui se produisent dans le niveau supérieur pour les atomes dont les vitesses  $V_z$  ( $0z$ , axe du laser) sont comprises dans une étroite bande.

<sup>\*</sup> Des expériences d'amplification et d'absorption non linéaires ont été faites récemment en plaçant la cellule dans la cavité laser. En plus de l'analyse à haute résolution de structures moléculaires en absorption, elles ont permis de mettre en évidence un phénomène de "Lamb dip" en absorption (20) (21) (22).

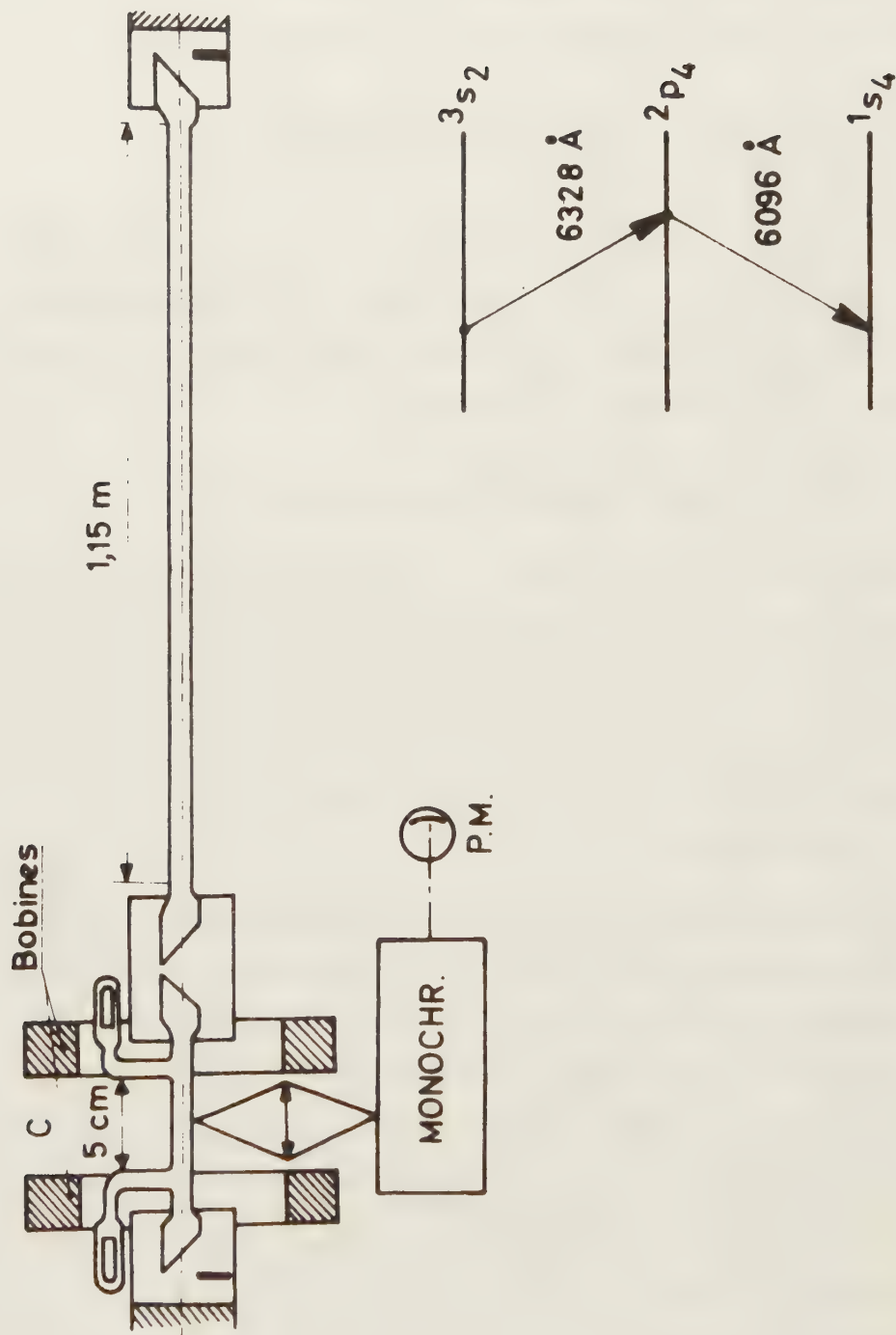


Fig. 5 Expérience d'effet Hanle.  
d'après M.DUMONT et B.DECOMPS (26)

Quand le laser oscille à la fréquence  $\nu_0$ , le changement de population se produit pour les atomes de vitesse  $V_z = 0$ , il se traduit par la superposition d'un étroit profil de Lorentz au profil normal de la raie à  $6096 \text{ \AA}$ .

Quand le laser oscille à une fréquence  $\nu \neq \nu_0$ , le changement de population se produit pour les atomes de vitesse voisine de  $V_z = \pm \frac{c(\nu - \nu_0)}{\nu_0}$ , il se traduit par l'apparition de deux profils de Lorentz dont la séparation vaut :

$$2 \frac{\nu'_0}{c} |V_z| = (\nu - \nu_0) \frac{\nu'_0}{\nu}$$

A partir de cette expérience, les auteurs ont pu déterminer l'écart isotopique dans la transition à  $6096 \text{ \AA}$  et dans la transition à  $1,15 \mu$ ; pour la première l'écart est nettement plus petit que la largeur Doppler normale. D'une expérience identique, d'autres auteurs ont pu déduire la largeur naturelle des niveaux de ces mêmes transitions (25).

### III - B - Expérience d'effet Hanle

(VIII)

Réalisée par M. DUMONT et B. DECOMPS (26) (27), l'expérience consiste à étudier le changement d'intensité et de polarisation de diverses raies de fluorescence du néon lorsque se produit l'oscillation laser aux longueurs d'onde suivantes :  $6328 \text{ \AA}$ ,  $6401 \text{ \AA}$ ,  $7305 \text{ \AA}$ ,  $1,15 \mu$  et  $1,52 \mu$ . La cellule contenant le gaz est placée à l'intérieur de la cavité, elle est plongée dans un champ magnétique d'intensité variable (fig. 5).

En champ nul et en présence de l'oscillation laser, le rayonnement de fluorescence est polarisé.

En faisant varier le champ magnétique depuis zéro, on constate que l'intensité des raies de fluorescence varie suivant une courbe de Lorentz et que le rayonnement n'est plus polarisé ; ce phénomène est lié à l'égalisation des populations qui se produit dans les sous-niveaux Zeeman. A partir de

cette expérience les auteurs ont déterminé la durée de vie des niveaux  $3s_2$ ,  $2s_2$  et  $2p_4$  du néon. Pour les niveaux  $3s_3$  et  $2s_2$ , ils ont étudié :

- la force d'oscillateur de la raie de résonance ( $ns_2 - IP_0$ ),
- l'influence, en fonction de la pression de néon, de l'emprisonnement de la raie de résonance sur le temps de relaxation de l'orientation créée dans les niveaux,
- les sections efficaces de chocs  $Ne^* - Ne$ ,  $Ne^* - He$ ,  $Ne^* - \text{élec- tron}$ .

Ils ont de plus mis en évidence un phénomène de "Lamb dip" magnétique. Une expérience indentique mais avec la cellule à l'extérieur de la cavité a permis l'étude, en fonction de la pression, des temps de relaxation de l'orientation des niveaux  $3s_2$  et  $2p_4$ . Elle exige l'utilisation d'un laser de grande puissance (28).

Les expériences de spectroscopie laser permettent donc d'atteindre la plupart des quantités que l'on mesure habituellement en spectroscopie atomique. Les expériences réalisées au laboratoire Aimé-Cotton permettent l'étude à haute résolution de la structure hyperfine et du déplacement isotopique de la plupart des transitions infrarouges du spectre d'arc des gaz rares. On cherche actuellement à étendre leur champ d'application à d'autres éléments (29).

## CHAPITRE II - AUTO EXPLORATION D'UNE CAVITE LASER

---

### AVEC EXCITATION ALTERNEE DES ISOTOPES.

---

Dans cette expérience la source lumineuse et l'appareil résolvant ne font qu'un : l'analyse à haute résolution des structures isotopiques est obtenue par variation continue de la longueur de la cavité d'un laser monomode.

#### I - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

Pour comprendre le principe de l'expérience, il est utile de faire un parallèle avec l'interféromètre de Fabry-Perot. Supposons qu'un tel interféromètre d'épaisseur  $L$  soit éclairé par une source lumineuse et qu'un diaphragme ne laisse passer que les rayons dont l'incidence est nulle ou très petite. La distribution d'intensité des rayons transmis est une fonction d'Airy, périodique en fonction de la quantité  $p = \sigma \Delta$  où  $\sigma$  est le nombre d'onde de la radiation et  $\Delta$  la différence de marche entre deux rayons interférants ; les valeurs entières de  $p$  correspondent aux maxima de la courbe d'Airy. A  $\Delta$  fixe et  $\sigma$  variable, l'intensité transmise est maximale pour les valeurs de  $\sigma$  égales à  $\frac{k}{\Delta}$  ; l'intervalle entre deux ordres successifs prend la valeur  $\Delta\sigma = \frac{1}{\Delta}$ .

Soit  $J(\sigma - \sigma_0)$  la distribution spectrale d'intensité de la source, centrée en  $\sigma_0$ . On peut étudier ce profil en utilisant cet interféromètre à condition de faire varier continuellement son épaisseur. Pour un ordre  $k$  donné, on associe à  $\Delta$  un nombre d'onde  $\sigma_c$  défini par  $\sigma_c = \frac{k}{\Delta}$  : dans l'échelle des  $\sigma_c$ , pour de petites variations de  $\Delta$ , la courbe

enregistrée est la convolution de la fonction d'appareil par  $J(\sigma - \sigma_0)$ . Pour une raie dont la largeur à mi-hauteur est nettement plus petite que  $\Delta\sigma$ , elle se reproduit périodiquement sur les ordres successifs  $k, k - 1, k - 2, \dots$ ; dans l'échelle des nombres d'onde enregistrés  $\sigma_c$ , l'intervalle entre deux ordres successifs prend la valeur  $\Delta\sigma_c = \frac{1}{\Delta}$  ce qui permet d'étalonner l'enregistrement.

Considérons maintenant une cavité laser constituée d'un tel interféromètre et d'un milieu amplificateur d'indice  $n$  que nous allons pour le moment considérer comme constant. Soient  $f$  les pertes de la cavité laser lors d'un aller simple du faisceau (pertes par réflexion sur les miroirs, par diffraction, par diffusion ...) et  $g(\sigma - \sigma_0)$ , le gain de la transition, en l'absence d'oscillation.  $g(\sigma - \sigma_0)$  est lié simplement à  $J(\sigma - \sigma_0)$  et lui est proportionnel quand il est faible. L'oscillation laser se produit lorsque le gain devient supérieur aux pertes (seuil de l'effet laser) : seule une partie de la courbe  $g(\sigma - \sigma_0)$ , de largeur  $\Delta\sigma_s$ , est située au-dessus du seuil. Si  $\Delta\sigma_s$  est inférieur à  $\Delta\sigma_c = \frac{1}{\Delta}$ , l'oscillation laser ne peut avoir lieu que sur un seul mode "axial" T.E.M.  $k, 0, 0$ ; nous laissons de côté pour le moment les modes "latéraux" T.E.M.  $k, m, n$  pour lesquels les pertes sont plus élevées (30) (31).

Une variation de longueur de la cavité entraîne une variation de la différence de marche : l'oscillation laser décrit alors un certain profil spectral sur les ordres successifs  $k, k - 1, k - 2, \dots$ . Comme dans le cas précédent, l'intervalle entre deux ordres successifs prend dans l'échelle des nombres d'onde enregistrés la valeur  $\Delta\sigma_c = \frac{1}{\Delta}$ .

W.E. LAMB Jr. a établi l'expression suivante pour le profil spectral de l'oscillation laser dans le cas où l'on peut négliger l'influence de la pression : l'élargissement de la raie est dû à l'effet Doppler, supposé très supérieur à la largeur naturelle (32) (33).

$$I(\sigma - \sigma_0) = I_0 \frac{1 - \exp\left(\frac{(\sigma - \sigma_0)^2}{\sigma_0^2 \Delta\sigma_s^2}\right) \cdot \mathcal{H}^{-1}}{1 + \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 + c^2(\sigma - \sigma_0)^2}}$$

- $\sigma$  : nombre d'onde de l'oscillation  
 $\Delta\sigma_D$  : largeur Doppler de la transition  
 $\gamma_{ab} = 1/2 ( \gamma_a + \gamma_b )$ , demi-largeur radiative de la transition  
 $\mathcal{P}$  : excitation relative, quantité qui dépend de la différence de population qui existe entre les deux niveaux de la transition.

L'expression précédente montre que le profil  $I(\sigma - \sigma_0)$  est symétrique par rapport à  $\sigma_0$  : il peut présenter, selon les conditions d'excitation de la décharge, un creux au sommet également centré en  $\sigma_0$  ("Lamb dip"). Le profil enregistré diffère seulement de  $I(\sigma - \sigma_0)$  par une altération de l'échelle des nombres d'onde mais la symétrie de la courbe est conservée : le milieu contenu dans la cavité étant amplificateur, l'indice  $n$  est en réalité fonction de la fréquence de l'oscillation (dispersion anormale). Cet effet est compliqué par un phénomène non linéaire dû aux changements sélectifs de population qui se produisent dans les niveaux intéressés ("Hole Burning") (Cf. chapitre III p 56 ). La différence entre la fréquence de l'oscillation et la fréquence de résonance de la cavité inactive varie au cours du balayage de la cavité : le décalage dépend de la forme du profil  $J(\sigma - \sigma_0)$ , des pertes dans la cavité, des conditions d'excitation de la décharge et de l'intensité de l'oscillation laser, il est nul au centre des profils enregistrés. Ceci n'est évidemment vrai que dans le cas où le profil  $J(\sigma - \sigma_0)$  est symétrique : dans le cas contraire, A. SZOKE et A. JAVAN ont montré expérimentalement que le profil enregistré peut être fortement modifié, à la fois en intensité et en fréquence (2).

En définitive lorsqu'on fait varier continuellement la longueur de la cavité d'un laser monomode, la fréquence de l'oscillation laser et la fréquence de résonance de la cavité sont en général distinctes, elles sont confondues au centre des profils symétriques ; comme dans une méthode de Fabry-Perot, la mesure de l'écart entre les ordres successifs enregistrés permet d'étalonner l'échelle des nombres d'onde. L'application d'une telle méthode à la mesure des structures hyperfines et des écarts

isotopiques ne peut se faire que si les raies sont symétriques et isolées, la structure à analyser devant être complètement résolue dans la source.

Pour les gaz rares, aux longueurs d'onde qui nous intéressent -  $2\mu$  à  $9\mu$  - les structures hyperfines sont en général grandes. Pour l'isotope 129 du xénon, elles varient de 0 à 270 mk (10) ; d'autres méthodes de mesure sont mieux adaptées. Les écarts isotopiques sont par contre plus petits que la largeur Doppler des raies ainsi que le montre le tableau ci-dessous concernant quelques transitions intenses :

|                                     | $\lambda$<br>( $\mu$ ) | Ecartis isotopiques (mk) | Largeur Doppler<br>à 300°K(mk) |
|-------------------------------------|------------------------|--------------------------|--------------------------------|
|                                     |                        |                          |                                |
| $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne} *$ | 3, 39                  | 2, 5                     | 8, 20                          |
|                                     | 5, 40                  | 5                        | 5, 15                          |
| $^{40}\text{A} - ^{36}\text{A}$     | 3, 13                  | 4, 5                     | 6, 25                          |
| $^{134}\text{Xe} - ^{132}\text{Xe}$ | 3, 50                  | 1, 40                    | 3, 10                          |
|                                     | 5, 57                  | 1, 65                    | 1, 90                          |

A condition de disposer d'isotopes purs ou suffisamment enrichis, on peut résoudre le problème en séparant les sources lumineuses . Nous avons adopté cette solution et réalisé l'expérience suivante :

Les deux isotopes dont on veut mesurer l'écart sont contenus dans deux tubes à décharge alignés suivant l'axe de la cavité laser ; ils sont excités en alternance pendant des intervalles de temps égaux lors du balayage en fréquence de la cavité. En choisissant la vitesse de balayage de façon que le temps nécessaire pour passer d'un ordre à l'autre soit beaucoup plus grand que la durée d'excitation de chacun des tubes, il est possible d'obtenir sur un même enregistrement, mais en "pointillé", les

\* Mesures préliminaires par S. LIBERMAN.

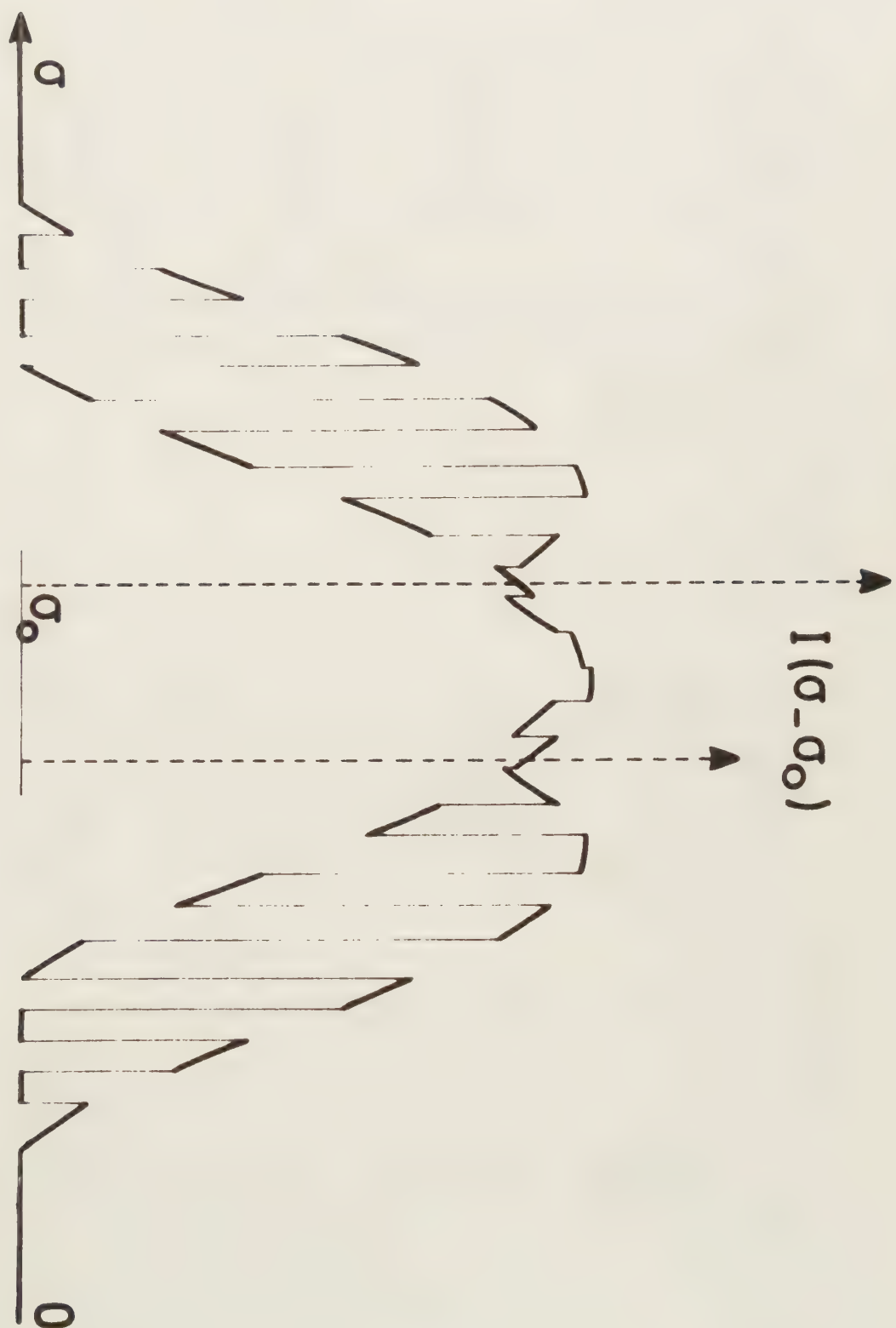


Fig. n°6

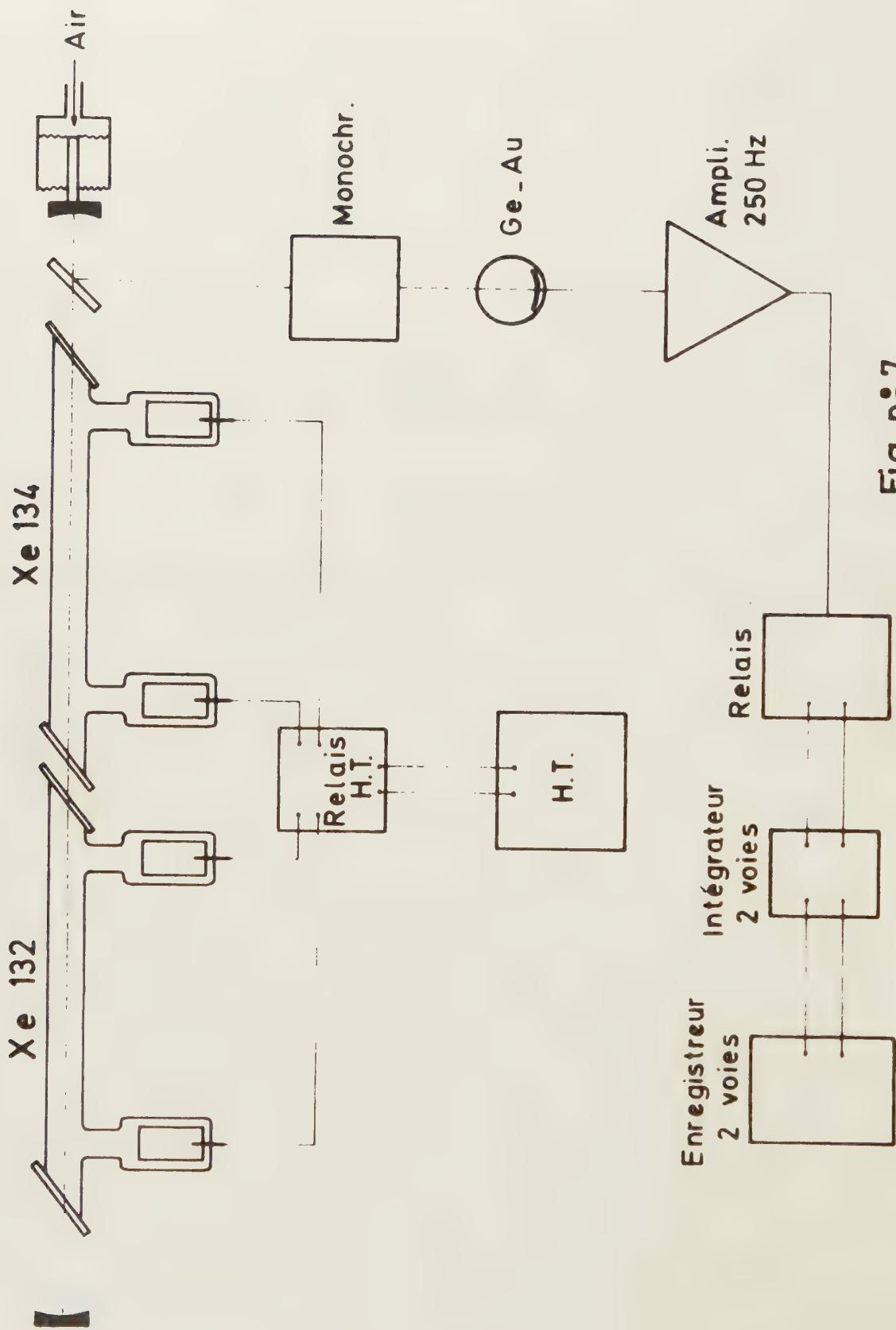


Fig. n° 7

profils relatifs aux deux isotopes (fig. 6). La mesure du décalage entre les deux profils correspondant au même ordre, rapportée à la mesure de l'intervalle entre ordres, donne la valeur de l'écart isotopique de la transition comme dans une méthode classique de Fabry-Perot.

Pour appliquer cette méthode, trois conditions essentielles sont à respecter :

- il faut disposer d'isotopes purs ou suffisamment enrichis donnant des raies symétriques et les utiliser dans des conditions aussi identiques que possible,
- il faut n'exciter à chaque instant qu'un seul mode axial T. E. M.  $k, 0, 0$  de la cavité,
- il faut trouver une longueur de cavité telle que l'amplification soit suffisante et que l'intervalle entre ordres soit au moins de l'ordre de grandeur de la largeur à mi-hauteur de la raie.

Dans ces conditions la méthode doit permettre de mesurer avec une bonne précision des écarts isotopiques de grandeur très variable. Avant d'exposer nos résultats, nous allons décrire le dispositif expérimental et examiner les diverses sources d'erreur.

## II - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

La figure 7 montre le schéma de principe de l'expérience.

### II - A - Les tubes à décharge

La partie utile des tubes à décharge est placée dans un vase de Dewar dont elle est solidaire par construction (fig. 8) ; nous avons ainsi la possibilité de refroidir la décharge à une température voisine de celle de l'azote liquide. Les fenêtres, inclinées à l'incidence de Brewster, sont en fluorine. Pour réduire au minimum les effets de la cataphorèse

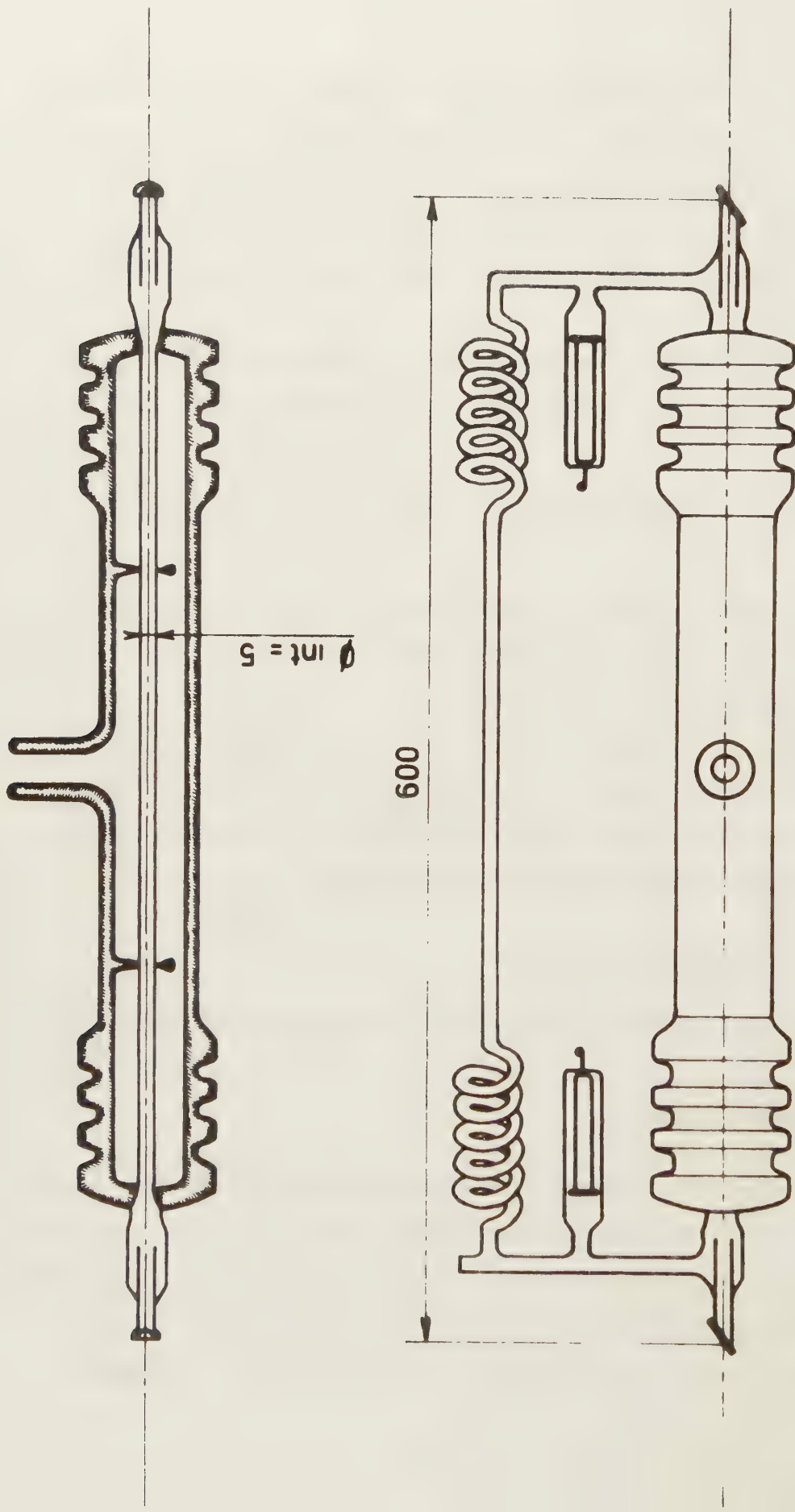


Fig. n° 8

qui se produit dans les mélanges gazeux, l'anode et la cathode sont reliées par un serpentin de grande longueur dans lequel la décharge ne passe pas. Pour chaque couple d'isotopes étudié, nous avons utilisé deux jeux de tubes identiques dont les principales caractéristiques sont les suivantes :

|                            |                      |                         |   |
|----------------------------|----------------------|-------------------------|---|
| :                          | :                    | :                       | : |
| : Longueur de la décharge: | Diamètre intérieur : | Intervalle spectral :   | : |
| : (m)                      | : (mm)               | : associé aux 2 tubes : | : |
| :                          | :                    | : $\Delta\sigma_c$ (mk) | : |
| :                          | :                    | :                       | : |
| : 0,50                     | : 5                  | : 3,75                  | : |
| :                          | :                    | :                       | : |
| :                          | :                    | :                       | : |
| : 0,30                     | : 4                  | : 5,38                  | : |
| :                          | :                    | :                       | : |

Afin d'éviter toute contamination entre les échantillons isotopiques, deux bancs à vide entièrement séparés sont utilisés pour le remplissage des tubes et les pressions sont mesurées par deux jauges indépendantes ; pour certaines raies, la mesure des pressions entraîne une erreur importante dans la détermination des écarts isotopiques. Nous avons utilisé des jauges de deux types :

- jauges de Pirani dont la précision est suffisante jusqu'à 0,2 torr et devient de plus en plus mauvaise aux pressions élevées,
- capteurs de pressions à membrane déformable, mesurant la pression absolue entre 0 et 5 torr. La précision, comparable à celle de la jauge de Pirani aux basses pressions, est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-3}$  en valeur relative entre 2 et 5 torr.

## II - B - La cavité résonnante

La lumière sort du laser par réflexion vitreuse sur une lame de

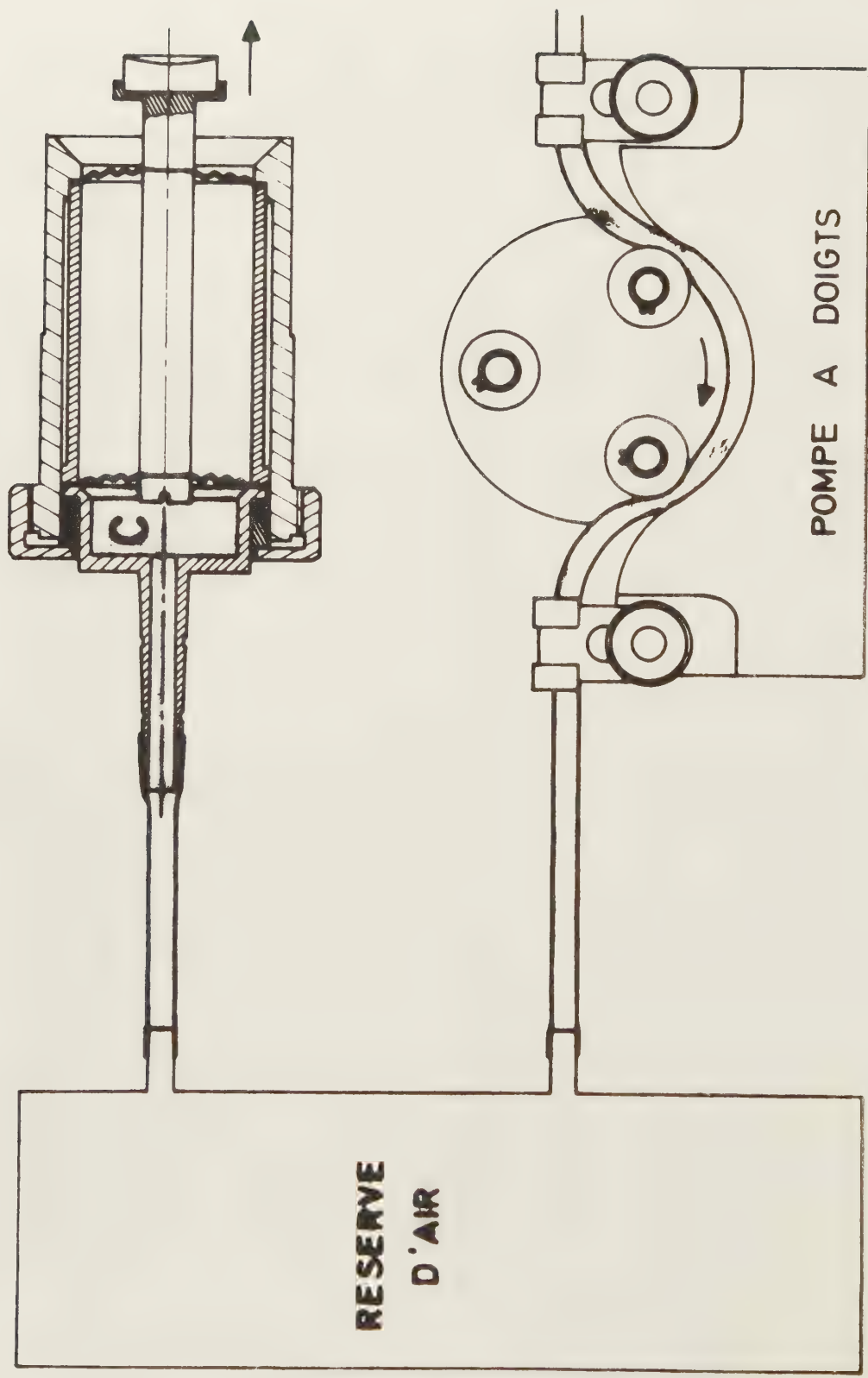


Fig. n°9

fluorine inclinée à  $45^\circ$  sur l'axe de la cavité ; les miroirs sont concaves, en général aussi réflecteurs que possible. Des revêtements de deux types ont été utilisés :

- revêtement en or, achromatique dans l'infrarouge,
- revêtement multidiélectrique sélectif.

La variation de longueur de la cavité est réalisée à l'aide d'un procédé pneumatique ; l'un des miroirs est fixé sur un équipement mobile constitué de deux membranes métalliques souples et solidaires l'une de l'autre suivant le schéma de la figure 9. Ainsi les rotations sont pratiquement interdites et seule la translation longitudinale désirée reste permise : elle est commandée par la pression qui règne dans le compartiment C à l'arrière de l'une des membranes. La variation de pression est obtenue à l'aide d'une pompe à doigts (de vitesse réglable) dont le débit est en principe indépendant de la différence de pression qui existe entre l'atmosphère extérieure et le compartiment C. Les membranes ont été choisies de façon à assurer au miroir un déplacement de 0,07 mm pour une variation de pression de 1 atmosphère : on peut ainsi balayer une quarantaine d'ordres successifs à la longueur d'onde de  $3,5 \mu$ .

Afin de n'exciter qu'un seul mode de la cavité, il peut être nécessaire de faire varier le seuil de l'effet laser, par exemple en augmentant les pertes ; ceci est obtenu en plaçant des diaphragmes circulaires de différents diamètres au centre de la cavité, entre les deux tubes à décharge. Pour que la stabilité de la cavité soit la plus élevée possible, le montage est protégé thermiquement et la cavité est isolée de l'atmosphère extérieure.

Pour constituer la cavité, nous avons choisi des miroirs identiques de grand rayon de courbure :  $R = 2,50 \text{ m}$ . Dans une cavité de ce type ( $L < R$ ), le volume utile de la décharge est maximum et le faisceau est quasi cylindrique ; de plus nous avons la possibilité, sans modifier sensiblement les pertes, de faire varier la longueur dans de larges

proportions, condition nécessaire pour déterminer le sens de l'écart isotopique mesuré. Ainsi, au cours de l'étude du xénon, nous avons utilisé des cavités de longueurs très différentes : de 0,80 m à 1,60 m. L'utilisation systématique d'une cavité confocale ( $R = L$ ) dont les pertes par diffraction sont les plus faibles et dans laquelle les modes sont mieux séparés demanderait un jeu de miroirs pour chaque longueur de cavité ; cet inconvénient est sérieux car il est nécessaire, comme nous le verrons par la suite, d'utiliser des miroirs sélectifs différents pour chaque région spectrale. L'utilisation d'une cavité plane pour laquelle les pertes sont élevées et dont le réglage est très critique n'est pas adaptée à notre expérience.

## II - C - Traitement du signal

Le récepteur optique est une cellule photorésistante au germanium dopé à l'or, refroidie à la température de l'azote liquide. Sa détectivité est de l'ordre de  $10^9 \text{ Hz}^{1/2}, \text{ cm}, \text{ W}^{-1}$  ; elle a été choisie en raison de sa courbe de réponse spectrale qui est relativement plate entre  $2 \mu$  et  $9 \mu$ . Nous utilisons une amplification alternative suivie d'une détection synchrone dont les avantages sont bien connus. La fréquence choisie est 750 Hz, fréquence pour laquelle le bruit de courant de la cellule devient négligeable. Lors de la mise au point de l'expérience, le signal issu de l'amplificateur était transmis à un enregistreur à réponse rapide lequel inscrivait sur la même voie les profils relatifs aux deux isotopes (fig. 6).

Nous avons constaté que ce système simple de détection et d'enregistrement était insuffisant et que la reconstitution des profils était difficile : en effet l'allumage des tubes crée des parasites gênants, et lorsque la décharge se produit dans un mélange de gaz, la prise de régime de l'effet laser est trop longue devant la durée de

l'excitation. Nous avons alors été conduits à intégrer le signal issu de l'amplificateur à l'aide de deux dispositifs intégrateurs indépendants dont les sorties sont branchées en permanence sur les deux voies d'un enregistreur potentiométrique <sup>\*</sup>.

L'ensemble des opérations est synchronisé par une unité de commutation (fig. 10) . Elle commande d'une part l'excitation en alternance des tubes n° 1 et n° 2 par l'intermédiaire de relais haute - tension et d'autre part l'intégration des signaux relatifs aux tubes n° 1 et n° 2 selon le processus suivant (fig. 11) :

pour le tube n° 1 :

- de 0 à  $T/2$ , passage du courant et intégration du signal,
- de  $T/2$  à  $T$ , mise en mémoire du signal et remise à zéro de l'intégrateur ;

pour le tube n° 2 :

le processus est identique mais décalé de  $T/2$ .

$T$  est ajustable de 5 s à 20 s. L'intégration commence dès l'allumage du tube correspondant. Après l'excitation, l'intégrateur se comporte comme un dispositif à impédance infinie et la tension finale, proportionnelle à l'intensité du signal laser, est gardée en mémoire et enregistrée pendant 2 s ; l'intégrateur est ensuite court - circuité et la tension tombe à zéro. Pendant la durée de l'excitation, la différence de marche dans la cavité a très légèrement varié, ce qui se traduit par une légère augmentation de la largeur du profil qui reste symétrique : les enregistrements sont ainsi des relevés point par point des profils et l'intensité de chacun des points de mesure est indépendante de celle des points immédiatement voisins. La linéarité de l'intégration est assurée à mieux que  $10^{-3}$ . La figure 12 montre un enregistrement de la raie à  $2,62 \mu$  du xénon réalisée dans ces conditions.

<sup>\*</sup> La réalisation de la partie électronique de cette expérience a fait l'objet d'une thèse de Doctorat d'Université, par J. SEGUIN (34).

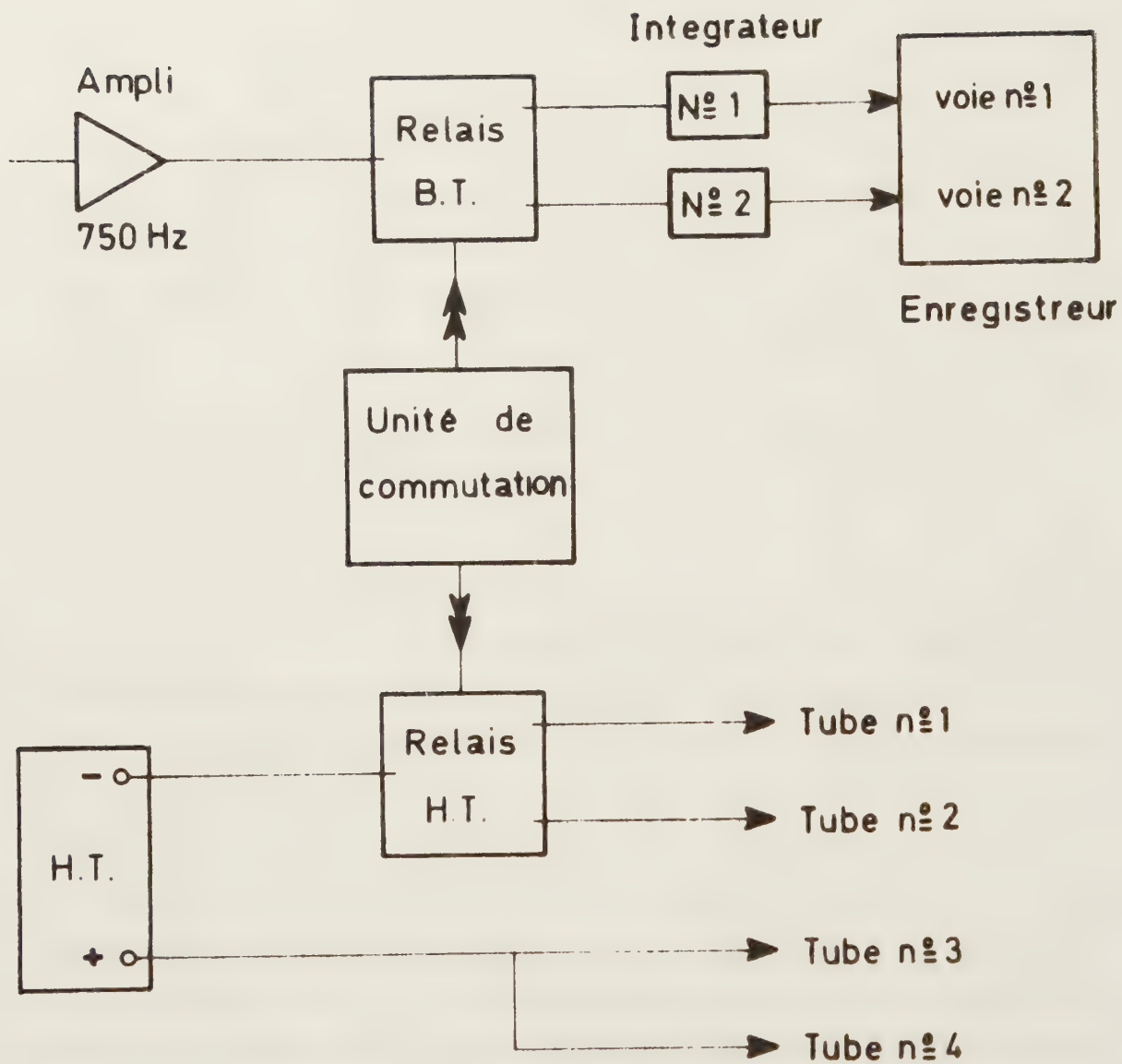


Fig. n° 10

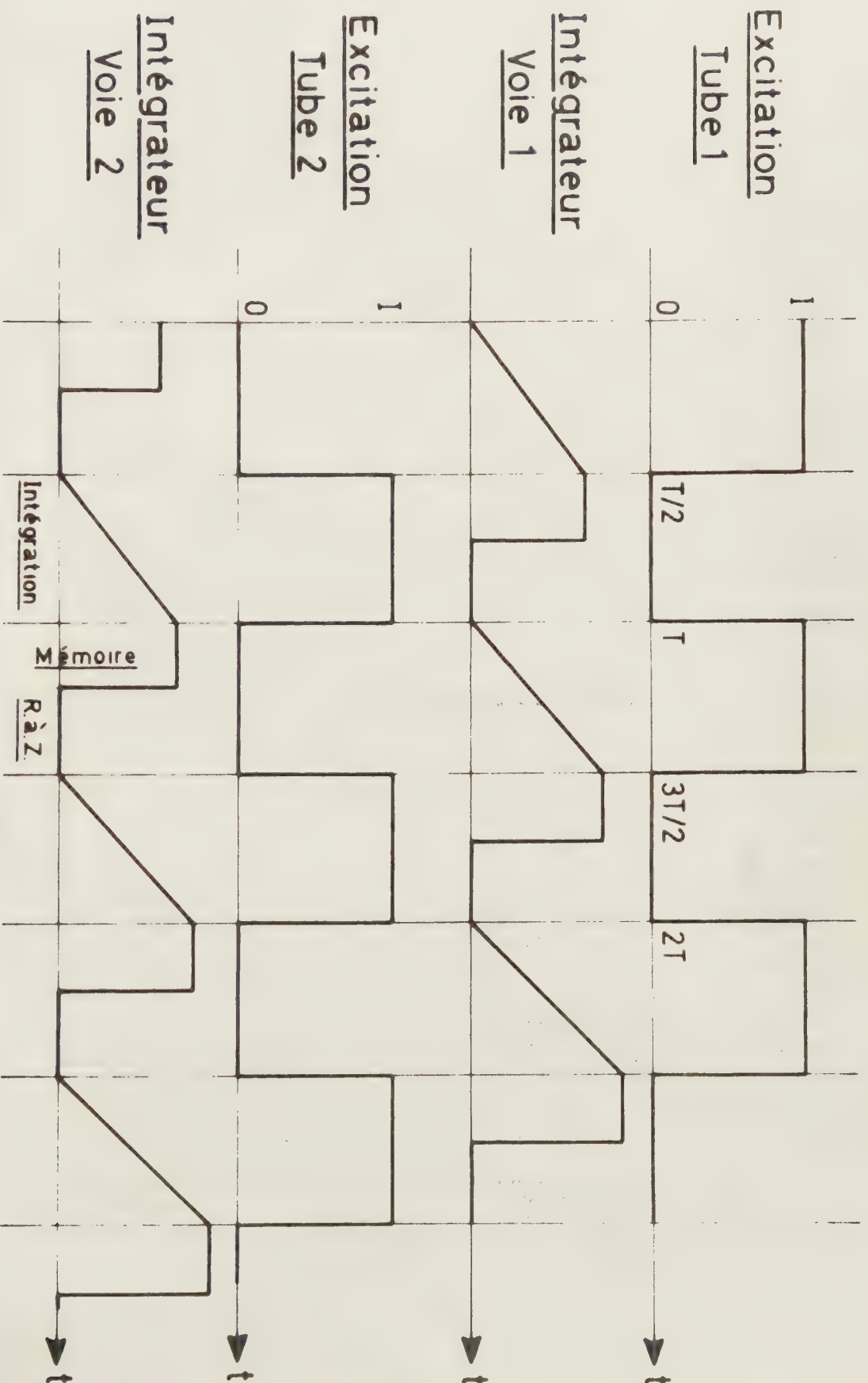


Fig. n° 11

$$\lambda = 2,6276 \mu \quad (5d \quad [5/2]_2 \rightarrow 6p \quad [5/2]_2)$$

$$\Delta\sigma = 5,38 \text{ mK}$$

$$\delta\sigma = (1,35 \pm 0,03) \text{ mK}$$

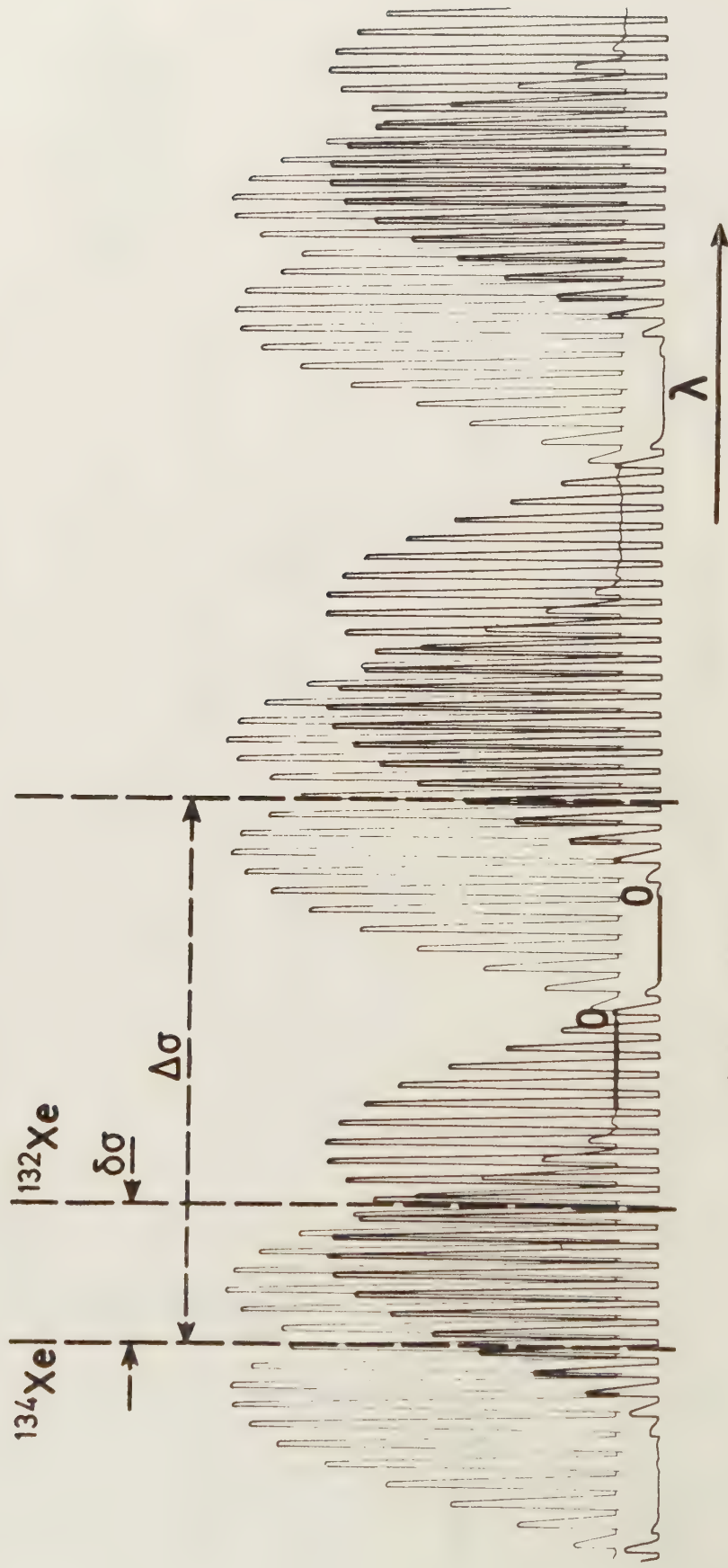
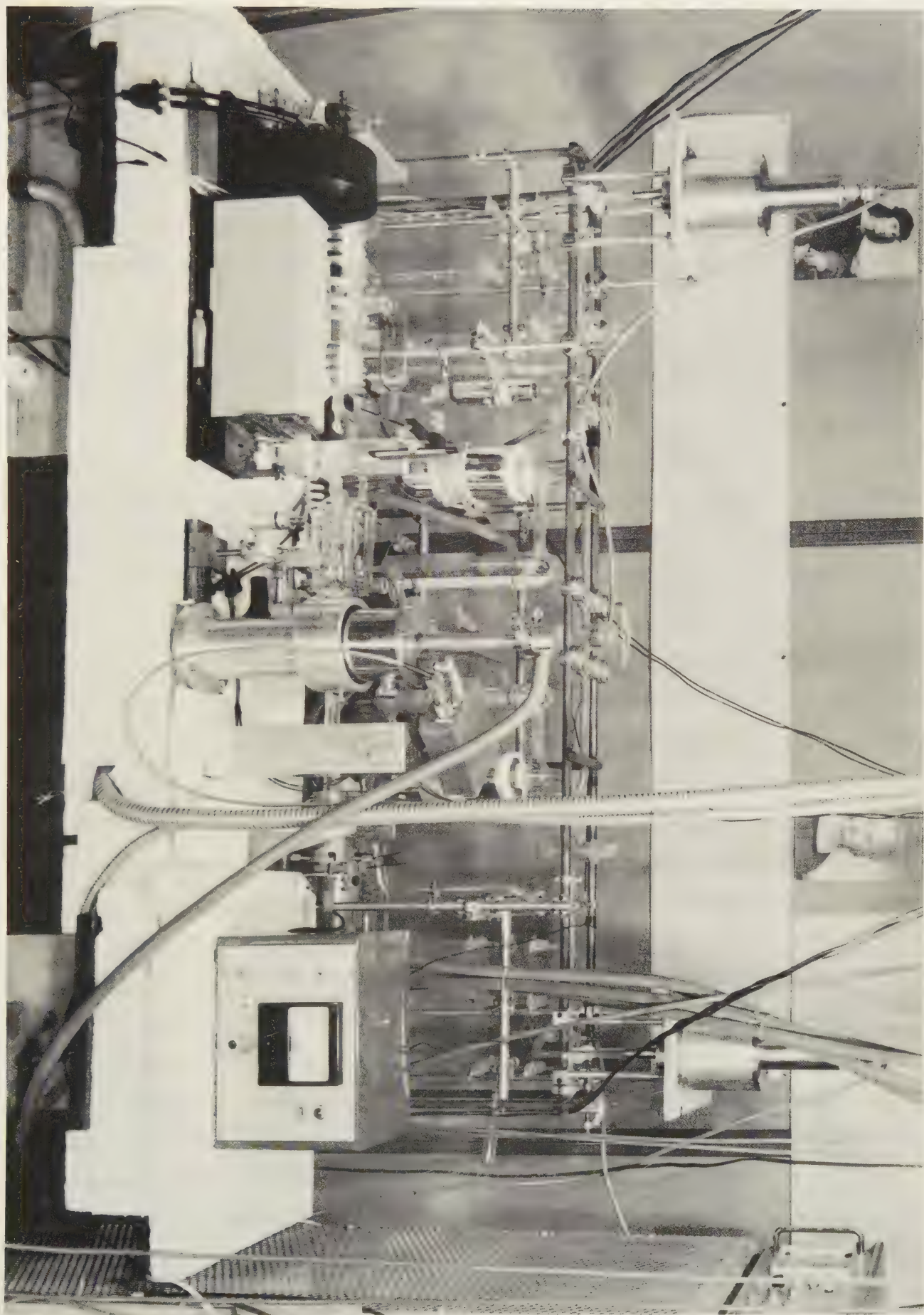


Fig. n°12



### III - SOURCES D'ERREUR, PRECISION DES MESURES

Les principales sources d'erreur dans la détermination des écarts isotopiques viennent d'une part de l'altération des profils spectraux et d'autre part de la séparation des sources lumineuses.

Il est possible de distinguer trois causes à l'altération des profils :

- le défaut de pureté isotopique de l'échantillon étudié,
- l'influence des raies ayant un niveau commun avec la raie étudiée,
- l'excitation de modes non dominants.

Parmi les erreurs introduites par la séparation des sources lumineuses, la plus importante est due à la différence des pressions qui existe dans les tubes à décharge mais on peut également envisager l'influence du dérèglement des tubes dans la cavité.

#### III - A - Influence du défaut de pureté isotopique

Si l'échantillon isotopique utilisé n'est pas suffisamment pur, le profil spectral  $I(\sigma - \sigma_0)$  enregistré lors du balayage en fréquence de la cavité n'est pas symétrique et le centre de gravité se déplace suivant le niveau d'excitation de la décharge. Cet effet a été montré sur la transition à  $1,15 \mu$  du néon naturel (2) et nous l'avons nous-mêmes constaté avec du xénon naturel lors de la mise au point de l'expérience. L'évaluation, en fonction de la composition du mélange et du niveau d'excitation de la décharge, de l'écart entre le centre de gravité du profil enregistré et le centre de la raie étudiée, conduirait à des calculs extrêmement complexes ; de plus elle exigerait au départ la connaissance de l'écart isotopique entre les divers composants du mélange. En conséquence, notre méthode de mesure n'est applicable dans la pratique que si les échantillons isotopiques sont suffisamment purs.

Lors des mesures sur l'argon, les échantillons utilisés étaient purs à plus de 99,5 %. Pour le xénon, le problème est plus compliqué en raison du nombre élevé d'isotopes contenus dans le mélange naturel. Hormis l'isotope 136, les échantillons que nous avons utilisés ont été fournis par le laboratoire de Spectrométrie de Masse du C.N.R.S. à Orsay : leur enrichissement respectif est indiqué dans le tableau I. Une pureté de l'ordre de 98 % est très difficile à obtenir pour les isotopes les plus abondants, elle est quasi irréalisable pour les moins abondants. La situation n'est cependant pas catastrophique car le taux d'impuretés correspond à un mélange d'isotopes dont le taux individuel reste faible. Une concentration de l'ordre de 95 % doit normalement convenir pour le xénon ; nous l'avons vérifié en mesurant les écarts  $\delta\sigma(134, 132)$  avec un échantillon de  $^{134}\text{Xe}$  enrichi à 91 %, puis avec un échantillon enrichi à 97 % : aucune différence caractéristique n'est apparue. La situation est moins favorable pour les isotopes légers dont l'enrichissement final reste faible ; les impuretés se trouvent principalement vers les isotopes lourds, ce qui peut expliquer la perte de précision que nous avons constatée dans la mesure des écarts  $\delta\sigma(132, 128)$ .

### III - B - Influence des raies ayant un niveau commun avec la raie étudiée

La différence de population entre les deux niveaux d'une transition laser est fonction de l'intensité de l'oscillation : elle varie donc au cours du balayage en fréquence de la cavité. Considérons deux transitions laser à  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ , de même niveau inférieur  $\underline{3}$  et de niveau supérieur  $\underline{1}$  et  $\underline{2}$  ; soient  $\mathcal{P}_1$  et  $\mathcal{P}_2$  leur probabilité de transition. Examinons l'influence mutuelle des deux transitions lors du balayage en fréquence de la cavité, suivant les valeurs relatives de  $\mathcal{P}_1$  et  $\mathcal{P}_2$ .

TABLEAU I  
ENRICHISSEMENT ISOTOPIQUE DES ECHANTILLONS  
FOURNIS PAR LE LABORATOIRE DE SPECTROMETRIE  
DE MASSE DU C. N. R. S.

---

|                   |                   |        |                   |                   |        |
|-------------------|-------------------|--------|-------------------|-------------------|--------|
| $^{134}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,94 % | $^{134}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,22 % |
|                   | $^{134}\text{Xe}$ | 91,22  |                   | $^{134}\text{Xe}$ | 97,62  |
|                   | $^{132}\text{Xe}$ | 2,32   |                   | $^{132}\text{Xe}$ | 0,75   |
|                   | $^{131}\text{Xe}$ | 2,16   |                   | $^{131}\text{Xe}$ | 0,61   |
|                   | $^{130}\text{Xe}$ | 0,50   |                   | $^{130}\text{Xe}$ | 0,10   |
|                   | $^{129}\text{Xe}$ | 2,69   |                   | $^{129}\text{Xe}$ | 0,65   |
|                   | $^{128}\text{Xe}$ | 0,18   |                   | $^{128}\text{Xe}$ | 0,05   |
|                   |                   |        |                   |                   |        |
| $^{132}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,36 % | $^{132}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,02 % |
|                   | $^{134}\text{Xe}$ | 0,31   |                   | $^{134}\text{Xe}$ | 0,05   |
|                   | $^{132}\text{Xe}$ | 97,02  |                   | $^{132}\text{Xe}$ | 99,72  |
|                   | $^{131}\text{Xe}$ | 0,98   |                   | $^{131}\text{Xe}$ | 0,15   |
|                   | $^{130}\text{Xe}$ | 0,16   |                   | $^{130}\text{Xe}$ | 0,01   |
|                   | $^{129}\text{Xe}$ | 1,07   |                   | $^{129}\text{Xe}$ | 0,05   |
|                   | $^{128}\text{Xe}$ | 0,07   |                   | $^{128}\text{Xe}$ | 0,01   |
|                   |                   |        |                   |                   |        |
| $^{130}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,09 % |                   |                   |        |
|                   | $^{134}\text{Xe}$ | 0,14   |                   |                   |        |
|                   | $^{132}\text{Xe}$ | 0,54   |                   |                   |        |
|                   | $^{131}\text{Xe}$ | 0,34   |                   |                   |        |
|                   | $^{130}\text{Xe}$ | 98,21  |                   |                   |        |
|                   | $^{129}\text{Xe}$ | 0,65   |                   |                   |        |
|                   | $^{128}\text{Xe}$ | 0,02   |                   |                   |        |

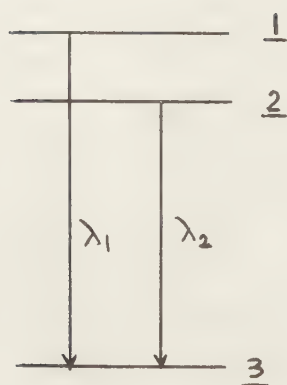
|                   |                   |        |                   |                   |        |
|-------------------|-------------------|--------|-------------------|-------------------|--------|
| $^{128}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,44 % | $^{128}\text{Xe}$ | $^{136}\text{Xe}$ | 0,61 % |
|                   | $^{134}\text{Xe}$ | 0,61   |                   | $^{134}\text{Xe}$ | 0,94   |
|                   | $^{132}\text{Xe}$ | 1,92   |                   | $^{132}\text{Xe}$ | 2,75   |
|                   | $^{131}\text{Xe}$ | 1,55   |                   | $^{131}\text{Xe}$ | 2,20   |
|                   | $^{130}\text{Xe}$ | 0,31   |                   | $^{130}\text{Xe}$ | 0,45   |
|                   | $^{129}\text{Xe}$ | 3,06   |                   | $^{129}\text{Xe}$ | 2,90   |
|                   | $^{128}\text{Xe}$ | 92,10  |                   | $^{128}\text{Xe}$ | 90,15  |

ENRICHISSEMENT ISOTOPIQUE DE  $^{136}\text{Xe}$  FOURNI PAR  
MONSANTO RESEARCH CORPORATION

|                   |       |
|-------------------|-------|
| $^{136}\text{Xe}$ | 99 %  |
| $^{134}\text{Xe}$ | 0,8 % |
| $^{132}\text{Xe}$ | 0,1 % |

COMPOSITION DU MELANGE NATUREL DE XENON

|                   |        |
|-------------------|--------|
| $^{136}\text{Xe}$ | 8,87 % |
| $^{134}\text{Xe}$ | 10,44  |
| $^{132}\text{Xe}$ | 26,89  |
| $^{131}\text{Xe}$ | 21,18  |
| $^{130}\text{Xe}$ | 4,08   |
| $^{129}\text{Xe}$ | 26,44  |
| $^{128}\text{Xe}$ | 1,90   |
| $^{126}\text{Xe}$ | 0,090  |
| $^{124}\text{Xe}$ | 0,096  |



- $\mathcal{P}_1 \gg \mathcal{P}_2$ , l'intensité de l'oscillation à  $\lambda_1$  est beaucoup plus élevée que celle à  $\lambda_2$  ; l'inversion de population entre 1 et 3 varie normalement lors du balayage et le profil  $I(\sigma - \sigma_0)$  est correctement décrit. Si l'intensité de l'oscillation est élevée, elle tend à détruire l'inversion de population entre 2 et 3 pour les atomes dont la vitesse est convenable, c'est-à-dire ceux dont la vitesse radiale correspond, par effet Doppler,

à la différence entre la fréquence de l'oscillation et la fréquence centrale de la transition. Lorsque la différence de marche dans la cavité est telle que les oscillations se produisent simultanément aux deux fréquences centrales, l'intensité de l'oscillation à  $\lambda_2$  est fortement diminuée. Lorsqu'il n'y a pas coïncidence, le phénomène est moins net et dissymétrique ; il peut même disparaître totalement lorsque l'oscillation à  $\lambda_2$  se produit pour une valeur de la différence de marche telle qu'il n'y a pas d'oscillations à  $\lambda_1$ . Les profils successifs  $I(\sigma - \sigma_0)$  sont ainsi déformés et déplacés ; pour certains ordres, l'oscillation peut même disparaître complètement. Toute mesure de l'écart isotopique à  $\lambda_2$  devient alors impossible.

- $\mathcal{P}_1 \approx \mathcal{P}_2$ . Si l'intensité de l'oscillation à  $\lambda_1$  et à  $\lambda_2$  est élevée, les profils  $I(\sigma - \sigma_0)$  et  $I(\sigma - \sigma_0)$  sont sans cesse modifiés au cours du balayage. Si l'intensité de l'oscillation reste faible, les profils sont peu modifiés : l'enregistrement d'un nombre élevé d'ordres successifs permet de réduire l'erreur qui résulterait de l'altération des profils.

Ce phénomène, étudié théoriquement par JAVAN et ses collaborateurs (35), est en fait plus complexe. Pour en diminuer l'influence, il faut empêcher, dans la mesure du possible, l'oscillation laser de se produire pour l'une des deux transitions. Plusieurs procédés sont possibles :

- on peut diminuer le coefficient d'amplification pour certaines transitions par absorption dans une vapeur moléculaire placée dans la cavité. Le procédé n'est pas général ;
- on peut diminuer le facteur de qualité de la cavité pour l'une des transitions, soit par l'utilisation d'un prisme sélecteur, soit par l'utilisation de miroirs à revêtement sélectif. C'est cette dernière solution que nous avons choisie ; la première aurait conduit à allonger la cavité et à rendre imprécise la mesure de  $\Delta$  .

Il est cependant difficile de supprimer l'effet laser quand l'oscillation est particulièrement forte : c'est le cas de la transition à  $3,50\mu$  du xénon, en compétition avec la transition à  $4,53\mu$ . Le rapport des probabilités de transition est de 30. Pour analyser la transition à  $4,53\mu$ , nous avons utilisé deux miroirs sélectifs dont la bande passante est centrée sur  $5,4\mu$  : le pouvoir réflecteur vaut 97 % à  $4,53\mu$  et 20 % seulement à  $3,50\mu$ .

### III - C - Influence des modes non dominants

Dans une cavité laser symétrique non confocale, de longueur  $L$  et dont les miroirs ont un rayon de courbure  $R$ , la fréquence d'un mode de vibration T.E.M.  $k, m, n$  est donnée par la relation (31) :

$$\nu_{k,m,n} = \frac{c}{2nL} \left( k + \frac{1+m+n}{\pi} \text{Arc cos} \left( 1 - \frac{R}{L} \right) \right)$$

La fréquence d'un mode  $k, m, n$  est intermédiaire entre la fréquence du mode  $k, 0, 0$  et celle du mode  $k + 1, 0, 0$ . Si la transition atomique est suffisamment large et si le gain est suffisant, plusieurs modes  $k, m, n$  peuvent osciller simultanément, ce qui déforme le profil  $I(\sigma - \sigma_0)$  correspondant à un mode  $k, 0, 0$  pur ; la déformation est surtout sensible dans les pieds et dans le "lamb dip" qui n'est plus symétrique.

A. G. FOX et T. LI (30) ont calculé les pertes par diffraction des modes dans une cavité confocale : leurs calculs montrent que le mode dominant T.E.M. k, 0, 0 subit les pertes de loin les plus faibles et que, pour un mode donné, les pertes augmentent très vite si l'on diminue le diamètre utile de la cavité. Ces résultats ont été généralisés à une cavité non confocale par H. KOGELNIK et T. LI pour les modes T.E.M. k, 0, 0 et T.E.M. k, 1, 0 (fig. 13) (36).

Pour les modes dominants, la distribution de l'intensité du faisceau suivant un diamètre du tube est donnée par une courbe de Gauss. On définit le "rayon" W du faisceau comme étant la distance à l'axe pour laquelle l'intensité tombe à 1/e de sa valeur maximale.

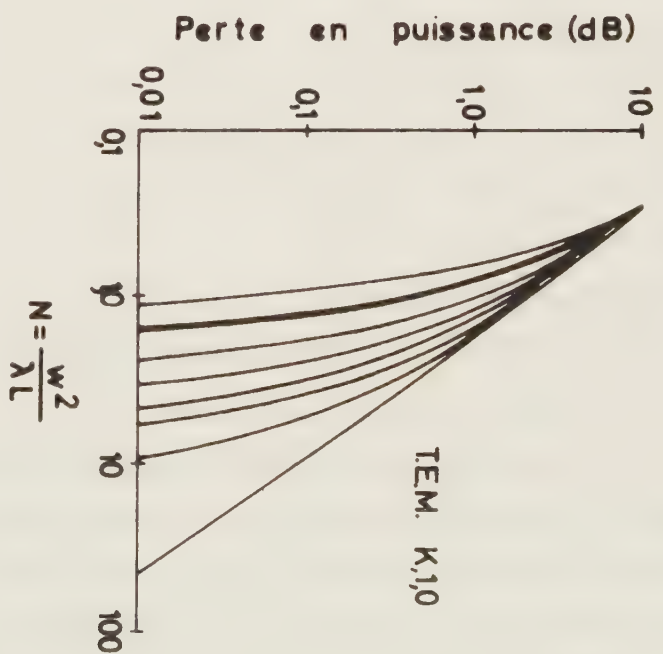
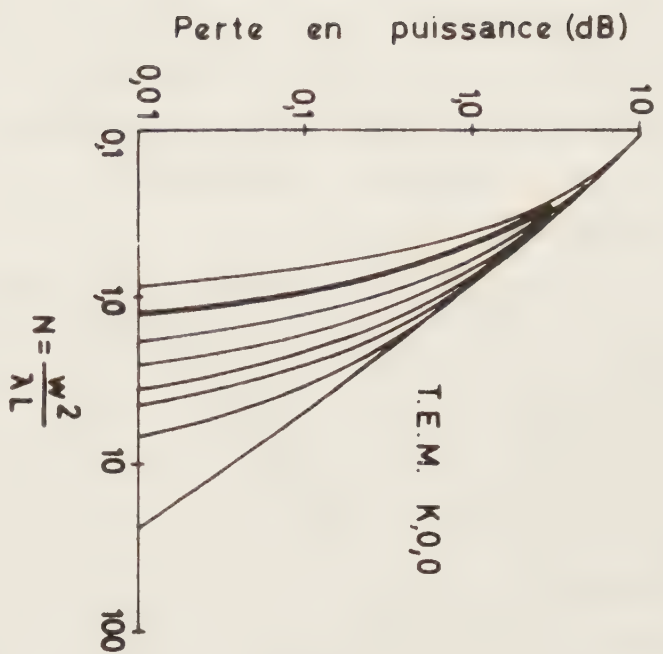
$$\begin{aligned} \text{Au centre de la cavité } W_o &= \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^{1/2} (L(2R - L))^{1/4} \quad (36) \\ \text{A la surface des miroirs } W &= \left( \frac{\lambda R}{\pi} \right)^{1/2} \left( \frac{2R - L}{L} \right)^{-1/4} \end{aligned}$$

Ces quantités sont plus grandes pour les modes non dominants.

Avec des tubes à décharge de faible longueur, il est relativement aisé de faire osciller la cavité sur le seul mode k, 0, 0. Pour les raies faibles, il suffit généralement d'ajuster le gain, par l'intensité du courant de décharge et par la pression du gaz. Pour les raies fortes, on peut de plus augmenter les pertes par diffraction en limitant les dimensions du faisceau au centre de la cavité, à l'aide des diaphragmes circulaires. Pour être sûrs que la cavité oscille bien en mode unique, nous contrôlons que l'intensité tombe à zéro entre les ordres et que les profils enregistrés sont symétriques.

### III - D - Influence du dérèglage des tubes

Lorsqu'on veut mesurer, à l'aide d'un Fabry-Perot, l'écart entre deux isotopes contenus dans deux sources distinctes, il est difficile d'assurer aux deux faisceaux la même différence de marche moyenne ; des défauts locaux à la surface des lames du Fabry-Perot et une



Perte par diffraction pour un aller simple du faisceau dans une cavité de longueur  $L$ . La courbe en trait fort correspond à  $R = 2 L$ . D'après KOGELENIK et LI (36).

FIG. n° 13

différence d'inclinaison des rayons peuvent introduire une erreur non négligeable dans le cas d'une mesure de haute précision. Dans notre méthode, le même problème se pose mais la situation se présente mieux car, en première approximation, la structure du faisceau est imposée par la cavité.

Le gain devant compenser les pertes, un dérèglement de la colonne lumineuse par rapport au mode peut entraîner une distorsion de ce dernier, d'où un écart "instrumental" entre les profils relatifs aux deux isotopes. On peut estimer grossièrement une limite supérieure de l'effet en admettant que le mode se centre complètement sur la décharge.

Considérons la cavité définie par  $R = 2,50$  m,  $L = 1,25$  m.

Avec un diaphragme central de diamètre égal au diamètre du faisceau associé au mode dominant, les pertes par diffraction sont de l'ordre de 6 % lorsque le tube est réglé (d'après les courbes de KOGELNIK et LI pour  $\lambda = 4 \mu$ ). Le dérèglement du tube tend à augmenter les dimensions du faisceau, ce qui se traduit par une augmentation des pertes ; on peut ainsi montrer que pour un dérèglement dont l'effet serait d'introduire un écart instrumental de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-2}$  mk, les pertes par diffraction passeraient de 6 % à 24 %. L'oscillation laser serait alors fortement diminuée et pourrait même disparaître complètement. Notre estimation est très grossière mais elle suffit pour montrer que le phénomène n'introduit pas d'erreur systématique notable au moins si l'on s'assure que l'intensité de l'oscillation est à peu près la même dans les deux tubes.

Nous avons vérifié ces conclusions en mesurant le décalage entre les profils enregistrés lorsque les deux tubes contiennent le même isotope, à la même pression. Avec les tubes de faible longueur pour lesquels le risque de dérèglement est le plus important, nous avons constaté que le décalage moyen mesuré, au maximum  $2 \cdot 10^{-2}$  mk, est dans

tous les cas inférieur à l'erreur quadratique moyenne correspondante ; nous pouvons finalement considérer qu'une éventuelle erreur systématique due au dérèglement des tubes est masquée par des erreurs aléatoires.

### III - E - Influence des conditions d'excitation des tubes à décharge

Au cours de nos mesures sur l'argon et le xénon, nous n'avons constaté aucune variation de fréquence en fonction de l'intensité du courant de décharge (5)(37). L'influence de la pression sur la fréquence de l'oscillation peut par contre introduire pour certaines raies une erreur de mesure assez importante (4) (38) (39) : le phénomène n'est vraiment important que pour les raies à  $3,65\mu$  et  $3,43\mu$  du xénon dont l'excitation nécessite un apport d'hélium. Par la suite, nous avons entrepris l'étude du déplacement de certaines raies de xénon en fonction de la pression : le résultat de ces mesures est contenu dans le paragraphe V.

En ce qui concerne l'erreur de mesure entraînée par les effets de pression, nous pouvons considérer deux types de transitions :

- les transitions excitées sans gaz étranger (c'est le cas de la majorité des raies du xénon). La pression de travail est comprise entre 0,08 torr et 0,25 torr. Une précision de l'ordre de 10 % suffit dans tous les cas pour que l'erreur reste inférieure à  $10^{-2}$  mk,
- les transitions excitées avec un gaz étranger. La pression du mélange est plus élevée, elle est comprise entre 1 et 3 torr, L'effet de pression dépend des transitions étudiées : pour celles dont la fréquence dépend peu de la pression, la précision des jauges de Pirani est suffisante pour que l'erreur introduite dans la mesure des écarts soit faible, de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-2}$  mk. Pour celles dont la fréquence dépend plus fortement de la pression, la précision de la jauge de Pirani est insuffisante et l'erreur de mesure peut atteindre  $10^{-1}$  mk (cas de quelques transitions dans l'argon et le xénon). L'utilisation ultérieure des capteurs

de pression à membrane déformable nous a permis de réduire, pour quelques raies intéressantes du xénon ( $\lambda = 3,65 \mu$  et  $\lambda = 3,43 \mu$ ), l'erreur de mesure à des valeurs de l'ordre de  $5.10^{-2}$  mk.

### III - F - Précision des mesures - Conditions d'enregistrement

L'intervalle entre ordres de la cavité est déterminé avec une précision relative de  $5.10^{-4}$ , ce qui conduit à une erreur négligeable devant les autres causes d'erreur. En cas de superposition d'ordres, il devient nécessaire d'améliorer la précision de la mesure sur  $\Delta\sigma_c$  en la portant à une valeur de l'ordre de  $2.10^{-4}$ .

Pour chaque transition étudiée et pour chaque couple d'isotopes, nous avons fait au minimum quatre enregistrements dans des conditions variées : pression du gaz étudié et pression du gaz étranger, intensité de la décharge, réglage et longueur de la cavité. Ceci nous permet d'évaluer les erreurs dues à l'emploi de sources séparées. Pour chacun des enregistrements, nous obtenons une valeur  $\delta\sigma_i$  de l'écart isotopique, calculée en faisant la moyenne des écarts successifs, au nombre de 12 à 20.

Nous avons pris pour valeur de l'écart isotopique  $\delta\sigma$ , la moyenne des écarts  $\delta\sigma_i$  et nous avons défini la précision de notre mesure comme étant :

- soit l'erreur maximale entre les  $\delta\sigma_i$  et  $\delta\sigma$ .
- soit l'erreur quadratique moyenne sur  $\delta\sigma$  si le nombre des enregistrements est suffisamment élevé. Cette erreur quadratique moyenne sur  $\delta\sigma$  est en général comparable à l'erreur quadratique moyenne sur les différents  $\delta\sigma_i$ .

La durée d'un enregistrement est de 1 heure environ.

#### IV - MESURES DE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE

Elles sont relatives à l'argon et au xénon.

##### IV - A - Mesures sur l'argon

Nous avons mesuré les écarts  $\delta\sigma(40, 36)$  pour six transitions infrarouges de l'argon entre  $2\mu$  et  $6\mu$  (40) (41). Elles font intervenir des configurations qu'il est difficile d'atteindre par des transitions visibles ou ultraviolettes.

Nous avons constaté que pour la plupart des raies, l'intensité lumineuse augmente considérablement lorsqu'on refroidit la décharge à la température de l'azote liquide ; outre la réduction de la largeur Doppler d'un facteur 2, le phénomène peut être causé par un changement des conditions de décharge. Pour ces raies, les enregistrements ont été effectués avec une décharge refroidie.

Les conditions d'excitation et la valeur des écarts mesurés sont indiquées dans le tableau II (42). Les écarts sont plus grands que les intervalles entre ordres utilisés : pour lever l'ambiguïté d'ordre et disposer d'une vérification supplémentaire, nous avons été conduits à utiliser trois cavités de longueur différente. La figure 14 montre un enregistrement de la raie à  $5,80\mu$  dans lequel les profils enregistrés sont décalés de quatre intervalles entre ordres. La précision des mesures, variable suivant les transitions, dépend essentiellement des effets de pression ; pour les écarts de grande valeur ( $\approx 35$  mk), la mesure de l'intervalle entre ordres intervient également.

L'analyse des résultats est faite au chapitre IV.

##### IV - B - Mesures sur le xénon

Nous avons mesuré les écarts  $\delta\sigma(136, 132)$ ,  $\delta\sigma(134, 132)$ ,  $\delta\sigma(132, 130)$  et  $\delta\sigma(132, 128)$  pour quinze transitions, entre  $2\mu$  et  $7,5\mu$

TABLEAU II

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | Classification                                 | Ecart<br>$\delta\sigma(40, 36)$<br>(mk) | P<br>Argon<br>(torr) | P<br>Gaz étranger<br>(torr) | I<br>(mA) | T<br>(°K) |
|------------------------|------------------------------------------------|-----------------------------------------|----------------------|-----------------------------|-----------|-----------|
| 2, 208                 | $3p^5 3d [1/2]_1 \rightarrow 3p^5 4p' [3/2]_2$ | $34,92 \pm 0,06$                        | 0,09                 | 3 (He)                      | 6         | 80        |
| 2, 397                 | $3d [1/2]_0 \rightarrow 4p' [1/2]_1$           | $35,13 \pm 0,04$                        | 0,09                 | 2,5 (He)                    | 3         | 80        |
| 2, 567                 | $5p' [1/2]_0 \rightarrow 5s' [1/2]_1$          | $7,15 \pm 0,09$                         | 0,07                 | 0,7 (He)                    | 20        | 300       |
| 2, 862                 | $5p' [3/2]_2 \rightarrow 5s' [1/2]_1$          | $6,77 \pm 0,09$                         | 0,09                 | 3 (He)                      | 5         | 300       |
| 3, 133                 | $5p [1/2]_1 \rightarrow 5s [3/2]_2$            | $4,49 \pm 0,04$                         | 0,07                 | 1,4 (Ne)                    | 2         | 80        |
| 5, 804                 | $4d [3/2]_2 \rightarrow 5p [3/2]_2$            | $14,10 \pm 0,03$                        | 0,06                 | 1,7 (He)                    | 10        | 80        |

Le signe + signifie que l'isotope le plus lourd a le plus grand nombre d'onde.

$\lambda = 5,804 \mu$  ( $4d [3/2]_2 \longrightarrow 5p [3/2]_2$ )

$\Delta\sigma = 3,38 \text{ mK}$      $\delta\sigma = \delta\sigma' + (\Delta\sigma \times 4) = (14,10 \pm 0,03) \text{ mK}$

$T = 80^\circ \text{K}$

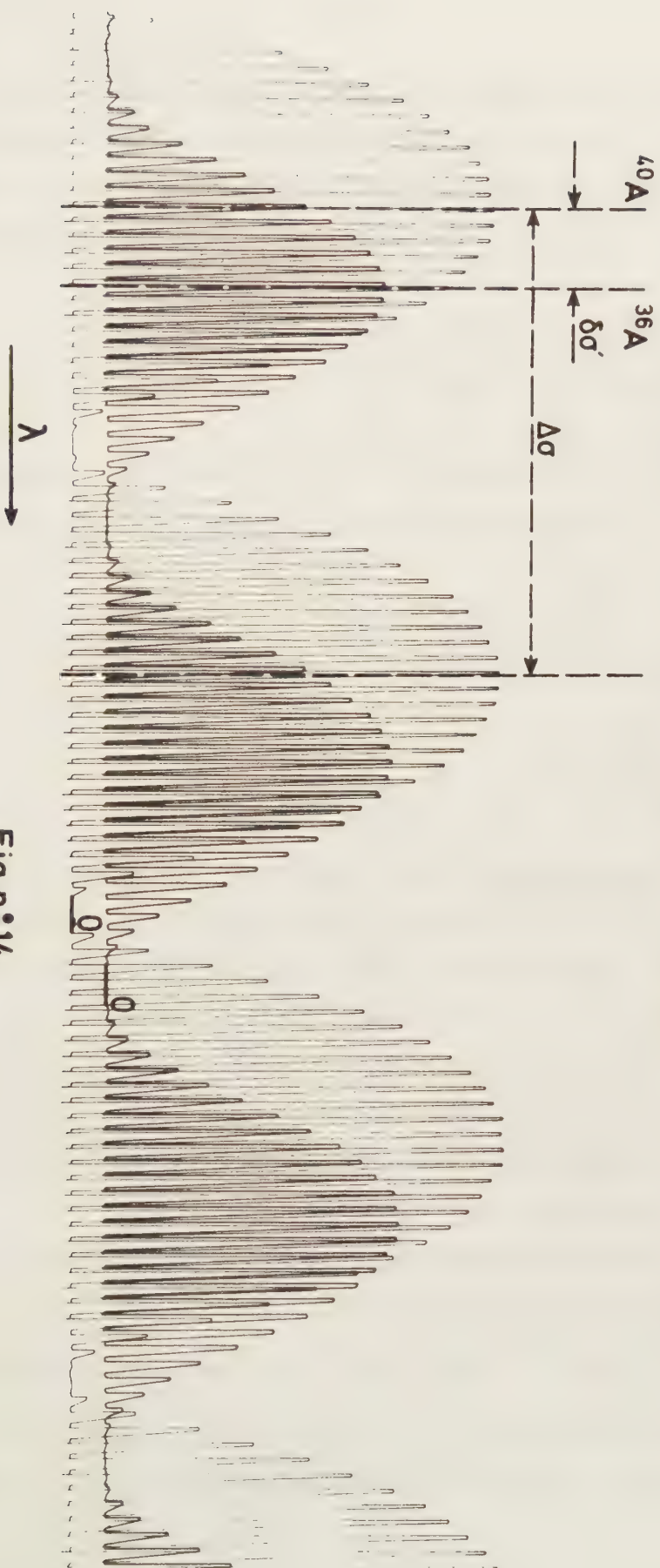


Fig n°14

(40) (41). Pour le couple (134, 132), nous avons mesuré les écarts de cinq transitions supplémentaires, ce qui nous a permis d'obtenir un contrôle de la précision des mesures. Les deux schémas de niveaux de la figure 15 montrent que, par application du principe de Ritz, les relations suivantes doivent être vérifiées :

$$\delta\sigma(2, 62 \mu) - \delta\sigma(3, 36 \mu) = \delta\sigma(4, 53 \mu) - \delta\sigma(7, 31 \mu)$$

$$\delta\sigma(3, 27 \mu) - \delta\sigma(4, 53 \mu) = \delta\sigma(3, 67 \mu) - \delta\sigma(5, 35 \mu)$$

Elles le sont effectivement à 0,02 mk et 0,01<sub>5</sub> mk près respectivement, ce qui est largement compatible avec l'erreur de mesure commise sur chaque raie.

Nous avons pu obtenir un autre contrôle de la précision en calculant les valeurs des déplacements isotopiques relatifs (Cf chapitre IV) :

$$\rho' = \frac{\delta\sigma(132, 130)}{\delta\sigma(134, 132)} \quad \text{et} \quad \rho'' = \frac{\delta\sigma(130, 128)}{\delta\sigma(132, 130)}$$

Nous avons constaté, qu'à la précision des mesures  $\rho'$  et  $\rho''$  sont égaux à 1,03 pour toutes les transitions étudiées. Ce résultat peut s'expliquer de la façon suivante : pour les raies dont l'effet de volume est important dans le couple d'isotopes (136, 132), les valeurs de  $\rho'$  et  $\rho''$  égales à 1,03 indiquent que l'effet de volume varie très peu quand on passe du couple (134, 132) aux couples (132, 130) et (130, 128). En conséquence, pour toutes les raies du xénon,  $\rho'$  et  $\rho''$  doivent avoir la valeur 1,03, ce que nous avons effectivement vérifié.

Au cours de nos mesures, nous avons eu l'occasion de vérifier à 0,01 mk près la relation suivante :

$$\delta\sigma(136, 132) = \delta\sigma(136, 134) + \delta\sigma(134, 132) \text{ pour la transition à } 4,15 \mu.$$

Les conditions d'excitation des raies et la valeur des écarts mesurés sont indiquées dans le tableau III (43) (44) (45) (46). Comme pour

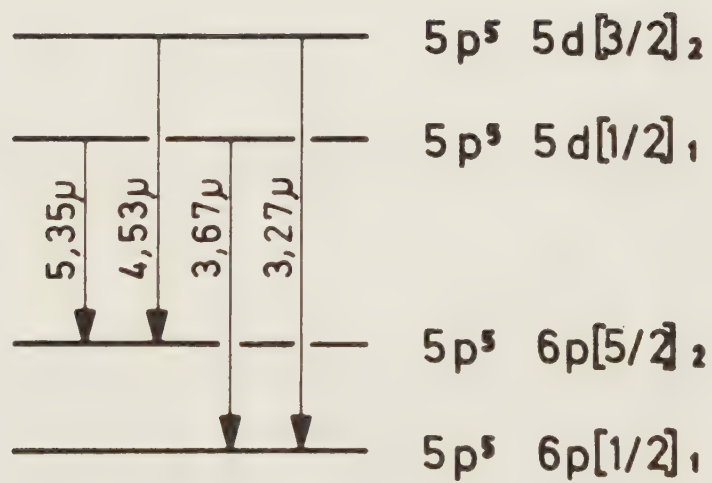
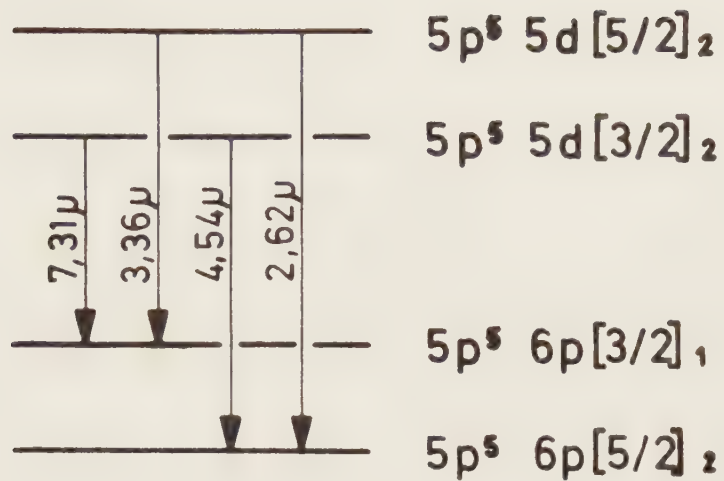


Fig. nº 15

TABLEAU III

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | Classification                                                                                                       | P<br>Xe<br>(torr) | P<br>Gaz étranger<br>(torr) | I<br>(mA) |
|------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------|-----------------------------|-----------|
| 2, 0268                | $5p^5 5d [3/2]_1 \rightarrow 5p^5 6p [3/2]_1$                                                                        | 0, 05             | 3 (He)                      | 3, 5      |
| 2, 6276                | $5d [5/2]_2 \rightarrow 6p [5/2]_2$                                                                                  | 0, 025            | 0, 6 (A)                    | 2, 5      |
| 2, 6518                | $5d [3/2]_1 \rightarrow 6p [1/2]_0$                                                                                  | 0, 05             | 3 (He)                      | 4, 5      |
| 3, 1078                | $5d [5/2]_3 \rightarrow 6p [3/2]_2$                                                                                  | 0, 025            | 1 (He)                      | 4         |
| 3, 2748                | $5d [3/2]_2 \rightarrow 6p [1/2]_1$                                                                                  | 0, 08             | .                           | 4         |
| 3, 3676                | $5d [5/2]_2 \rightarrow 6p [3/2]_1$                                                                                  | 0, 18             |                             | 3         |
| 3, 5080                | $5d [7/2]_3 \rightarrow 6p [5/2]_2$                                                                                  | 0, 15             |                             | 2, 5      |
| 3, 6798                | $5d [1/2]_1 \rightarrow 6p [1/2]_1$                                                                                  | 0, 08             |                             | 4         |
| 3, 8697                | $5d [5/2]_3 \rightarrow 6p [3/2]_2$                                                                                  | 0, 08             |                             | 9         |
| 3, 9966                | $5d [1/2]_0 \rightarrow 6p [1/2]_1$                                                                                  | 0, 15             |                             | 2, 5      |
| 4, 1527                | $5d [5/2]_2 \rightarrow 7p [3/2]_1$                                                                                  | 0, 15             |                             | 4, 5      |
| 4, 5393                | $5d [3/2]_2 \rightarrow 6p [5/2]_2$                                                                                  | 0, 25             |                             | 1, 5      |
| 4, 6109                | $5d [3/2]_2 \rightarrow 6p [1/2]_1$                                                                                  | 0, 15             |                             | 8         |
| 5, 3566                | $5d [1/2]_1 \rightarrow 6p [5/2]_2$                                                                                  | 0, 10             |                             | 10        |
| 5, 5754                | $5d [7/2]_4 \rightarrow 6p [5/2]_3$                                                                                  | 0, 18             |                             | 1, 5      |
| 7, 3167                | $5d [3/2]_2 \rightarrow 6p [3/2]_1$                                                                                  | 0, 25             |                             | 6         |
| 3, 4345                | $7p [5/2]_2 \rightarrow 7s [3/2]_1$                                                                                  | 0, 05             | 3 (He)                      | 6         |
| 3, 6518                | $7p [1/2]_1 \rightarrow 7s [3/2]_2$                                                                                  | 0, 08             | 2, 5 (He)                   | 4         |
| 5, 588                 | $\{ 7d [5/2]_3 \rightarrow 4f [7/2]_3$<br>$7d [5/2]_3 \rightarrow 4f [7/2]_4$<br>$7d [7/2]_3 \rightarrow 4f [9/2]_4$ | 0, 015            | 0, 35 (A)                   | 9         |
| 5, 6035                |                                                                                                                      | 0, 015            | 0, 35 (A)                   | 9         |

TABLEAU III

| $\lambda (\mu)$ | Classification                                                                                                                                                                                                    | $\delta\sigma(136, 132) \text{ mk}$ | $\delta\sigma(134, 132) \text{ mk}$ | $\delta\sigma(132, 130) \text{ mk}$ | $\delta\sigma(132, 128) \text{ mk}$ |
|-----------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| 2, 0268         | $5p^5 5d \left[ \frac{3}{2} \right]_1 \longrightarrow 5p^5 6p \left[ \frac{3}{2} \right]_1$                                                                                                                       |                                     | $0,02 + 0,05$                       |                                     |                                     |
| 2, 6276         | $5d \left[ \frac{5}{2} \right]_2 \longrightarrow 6p \left[ \frac{5}{2} \right]_2$                                                                                                                                 |                                     | $1,35 + 0,03$                       |                                     |                                     |
| 2, 6518         | $5d \left[ \frac{3}{2} \right]_1 \longrightarrow 6p \left[ \frac{1}{2} \right]_0$                                                                                                                                 | $0,07 + 0,01$                       | $0,03 + 0,01$                       | $0,01 + 0,02$                       | $0,01 + 0,02$                       |
| 3, 1078         | $5d \left[ \frac{5}{2} \right]_3 \longrightarrow 6p \left[ \frac{3}{2} \right]_2$                                                                                                                                 | $2,36 + 0,04$                       | $1,17 + 0,03$                       | $1,24 + 0,03$                       | $2,57 + 0,03$                       |
| 3, 2748         | $5d \left[ \frac{3}{2} \right]_2 \longrightarrow 6p \left[ \frac{1}{2} \right]_1$                                                                                                                                 | $3,16 + 0,01$                       | $1,69 + 0,01$                       | $1,76 + 0,01$                       | $3,54_5 + 0,02$                     |
| 3, 3676         | $5d \left[ \frac{5}{2} \right]_2 \longrightarrow 6p \left[ \frac{3}{2} \right]_1$                                                                                                                                 | $2,52_5 + 0,03$                     | $1,36 + 0,03$                       | $1,37 + 0,05$                       | $2,77_5 + 0,05$                     |
| 3, 5080         | $5d \left[ \frac{7}{2} \right]_3 \longrightarrow 6p \left[ \frac{5}{2} \right]_2$                                                                                                                                 | $2,63 + 0,05$                       | $1,38 + 0,03$                       | $1,41 + 0,01$                       | $2,93 + 0,03$                       |
| 3, 6798         | $5d \left[ \frac{1}{2} \right]_1 \longrightarrow 6p \left[ \frac{1}{2} \right]_1$                                                                                                                                 | $3,08 + 0,01$                       | $1,51 + 0,02$                       | $1,57 + 0,02$                       | $3,17 + 0,02$                       |
| 3, 8697         | $5d' \left[ \frac{5}{2} \right]_3 \longrightarrow 6p' \left[ \frac{3}{2} \right]_2$                                                                                                                               | $2,62 + 0,02$                       | $1,36 + 0,02$                       | $1,39_5 + 0,01$                     | $2,84 + 0,01$                       |
| 3, 9966         | $5d \left[ \frac{1}{2} \right]_0 \longrightarrow 6p \left[ \frac{1}{2} \right]_1$                                                                                                                                 | $3,12 + 0,03$                       | $1,47_5 + 0,02_5$                   | $1,51_5 + 0,04$                     | $3,13 + 0,05$                       |
| 4, 1527         | $5d' \left[ \frac{5}{2} \right]_2 \longrightarrow 7p \left[ \frac{3}{2} \right]_1$                                                                                                                                | $1,12 + 0,01$                       | $0,71_5 + 0,01$                     | $0,72_5 + 0,01$                     | $1,46 + 0,01$                       |
| 4, 5393         | $5d \left[ \frac{3}{2} \right]_2 \longrightarrow 6p \left[ \frac{5}{2} \right]_2$                                                                                                                                 | $2,83 + 0,01$                       | $1,53 + 0,02$                       | $1,58 + 0,01$                       | $3,23 + 0,01$                       |
| 4, 6109         | $5d' \left[ \frac{3}{2} \right]_2 \longrightarrow 6p' \left[ \frac{1}{2} \right]_1$                                                                                                                               | $2,52_5 + 0,02$                     | $1,29 + 0,01$                       | $1,32 + 0,01$                       | $2,67 + 0,01$                       |
| 5, 3566         | $5d \left[ \frac{1}{2} \right]_1 \longrightarrow 6p \left[ \frac{5}{2} \right]_2$                                                                                                                                 |                                     | $1,36_5 + 0,03$                     |                                     |                                     |
| 5, 5754         | $5d \left[ \frac{7}{2} \right]_4 \longrightarrow 6p \left[ \frac{5}{2} \right]_3$                                                                                                                                 | $3,14 + 0,04$                       | $1,66_5 + 0,01$                     | $1,71 + 0,02_5$                     | $3,42 + 0,04$                       |
| 7, 3167         | $5d \left[ \frac{3}{2} \right]_2 \longrightarrow 6p \left[ \frac{3}{2} \right]_1$                                                                                                                                 | $2,83 + 0,02$                       | $1,52 + 0,02$                       | $1,57 + 0,01$                       | $3,19 + 0,01$                       |
| 3, 4345         | $7p \left[ \frac{5}{2} \right]_2 \longrightarrow 7s \left[ \frac{3}{2} \right]_1$                                                                                                                                 | $-0,39 + 0,05$                      | $0 + 0,05$                          | $-0,05 + 0,05$                      | $-0,13 + 0,05$                      |
| 3, 6518         | $7p \left[ \frac{1}{2} \right]_1 \longrightarrow 7s \left[ \frac{3}{2} \right]_2$                                                                                                                                 | $-1,55 + 0,05$                      | $-0,54 + 0,05$                      | $-0,58 + 0,05$                      | $-1,20 + 0,05$                      |
| 5, 588          | $\left\{ \begin{array}{l} 7d \left[ \frac{5}{2} \right]_3 \longrightarrow 4f \left[ \frac{7}{2} \right]_3 \\ 7d \left[ \frac{5}{2} \right]_3 \longrightarrow 4f \left[ \frac{7}{2} \right]_4 \end{array} \right.$ |                                     | $0,30 + 0,10$                       |                                     |                                     |
| 5, 6035         | $7d \left[ \frac{7}{2} \right]_3 \longrightarrow 4f \left[ \frac{9}{2} \right]_4$                                                                                                                                 |                                     | $0,30 + 0,10$                       |                                     |                                     |

Le signe + signifie que l'isotope le plus lourd a le plus grand nombre d'onde.

$$\lambda = 4,6109 \mu \quad (5d' \quad [3/2]_2 \rightarrow 6p' \quad [1/2]_1)$$

$$\Delta\sigma = 3,37 \text{ mK} \quad \delta\sigma = (1,29 \pm 0,01) \text{ mK}$$

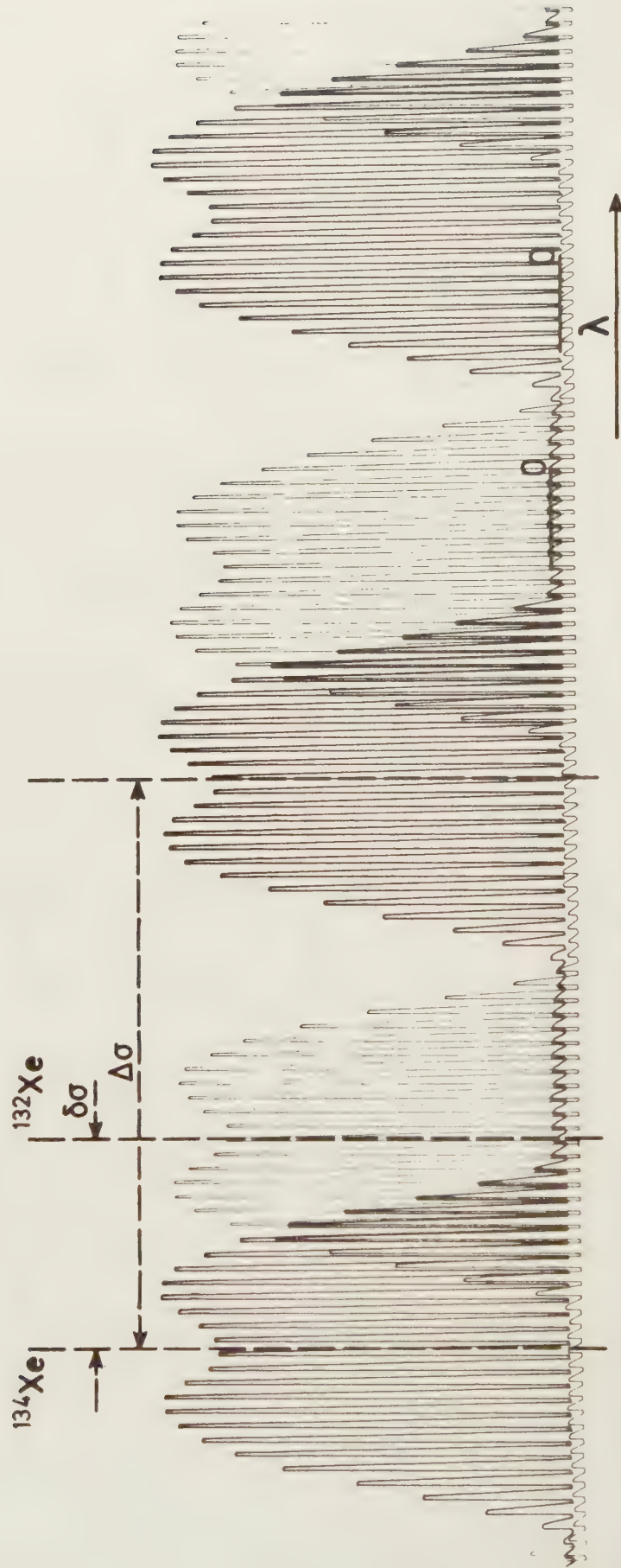


Fig. n° 16

$$\lambda = 2,6518 \mu \quad (5d \ [3/2]_1 \longrightarrow 6p \ [1/2]_0)$$

$$\Delta\sigma = 5,38 \text{ mK} \quad \delta\sigma = (0,03 \pm 0,01) \text{ mK}$$

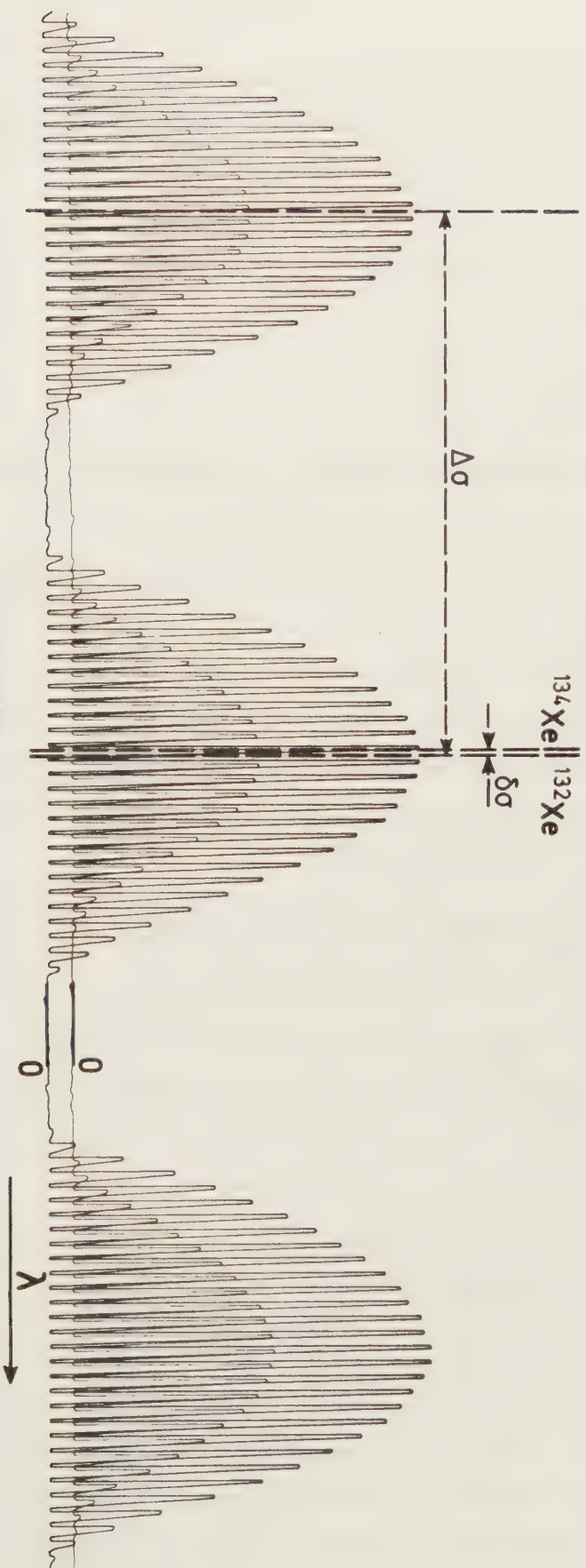


Fig. n°17

l'argon, les transitions font intervenir des configurations qu'il est difficile d'atteindre par des transitions visibles ou ultraviolettes. Elles sont de trois types :

$$5p^5 5d \longrightarrow 5p^5 np \quad (n = 6 \text{ ou } 7)$$

$$5p^5 7p \longrightarrow 5p^5 7s$$

$$5p^5 7d \longrightarrow 5p^5 4f$$

La figure 16 montre un enregistrement de la raie à  $4,61 \mu$ , excitée en xénon pur et la figure 17 montre un enregistrement de la raie à  $2,65 \mu$ , excitée dans un mélange de xénon - hélium. Pour cette dernière, le déplacement isotopique est très petit :  $(0,03 \pm 0,01) \text{ mk}$ .

La précision des mesures, variable suivant les transitions, peut atteindre dans les meilleurs cas, la valeur  $0,01 \text{ mk}$ . Toutes les mesures ont été faites en prenant l'isotope 132 comme référence.

L'analyse des résultats est faite au chapitre IV.

## V - ETUDE DES DEPLACEMENTS PAR PRESSION

Nous avons étudié le déplacement des raies spectrales du xénon sous l'influence d'une part de la pression du xénon, d'autre part de la pression d'hélium ; les deux tubes contiennent le même isotope  $^{136}\text{Xe}$ , pur à 99 %.

### V - A - Conditions d'enregistrement

La mesure des pressions est faite à l'aide des capteurs de pression à membrane déformable ; aux basses pressions, il est possible d'obtenir un contrôle supplémentaire en utilisant les jauges de Pirani. Nous avons utilisé les tubes de petite longueur et une seule valeur de l'intervalle entre ordres ( $\Delta\sigma_c = 5,38 \text{ mk}$ ). Pour toutes les mesures, la décharge a été maintenue à une température constante, peu différente de la température ambiante.

Pour chaque raie étudiée, nous avons fait un enregistrement avec la même pression dans les deux tubes qui étaient alors mis en communication directe : de cette façon nous avons vérifié que le décalage "instrumental" (Cf paragraphe III - D) était toujours inférieur aux erreurs aléatoires de mesure (de l'ordre de  $2.10^{-2}$  mk).

Comme celles qui utilisent des laser asservis en fréquence (4) (38) (39) notre méthode ne peut être correctement appliquée que si les raies restent symétriques ; nous pouvons par contre faire varier la pression dans de plus larges proportions (elle ne nécessite pas l'existence d'un "lamb dip").

#### V - B - Résultat des mesures

##### V - B - I - En xénon pur

Le domaine de variation de pression est ici restreint car, pour les raies étudiées, les conditions d'excitation qui permettent l'effet laser sont critiques. Nous avons procédé de la façon suivante : à partir de la pression initiale, identique dans les deux tubes, nous avons augmenté la pression du xénon dans l'un des tubes et mesuré l'écart qui en résulte. Les résultats sont indiqués dans le tableau ci-dessous.

| $\lambda$ | Pression initiale (torr) | $\Delta P$ (torr) | $\delta\sigma$ (mk) | $\Delta P/\delta\sigma$ (mk/torr) |
|-----------|--------------------------|-------------------|---------------------|-----------------------------------|
| 3,36      | 0,102                    | 0,104             | 0,04                | 0,40                              |
|           |                          | 0,200             | 0,07 <sub>5</sub>   | 0,37                              |
|           |                          | 0,292             | 0,10                | 0,34                              |
| 3,50      | 0,104                    | 0,096             | 0,02                | 0,21                              |
| 3,86      | 0,040                    | 0,040             | 0,01                | 0,25                              |
| 3,99      | 0,102                    | 0,092             | 0,02                | 0,22                              |
|           |                          | 0,152             | 0,04                | 0,26                              |
| 4,15      | 0,040                    | 0,040             | 0,01                | 0,25                              |

Pour toutes les raies, le déplacement se fait vers le bleu pour une augmentation de la pression ; la quantité  $\frac{\Delta P}{\delta \sigma}$  est sensiblement constante, aux erreurs expérimentales près.

#### V - B - 2 - En xénon - hélium

Le domaine de pression est cette fois beaucoup plus étendu. Nous avons procédé de la façon suivante :

- pour les raies dont l'excitation peut être obtenue en xénon pur, nous sommes partis d'une pression de xénon identique dans les deux tubes puis nous avons augmenté par paliers la quantité d'hélium dans l'un des tubes jusqu'à la pression pour laquelle l'oscillation s'arrête,
- pour les raies dont l'excitation nécessite un apport d'hélium, nous avons fait varier la pression dans l'un des tubes entre deux limites déterminées par l'arrêt de l'oscillation ; l'autre tube est au contraire maintenu à une pression "moyenne" pour laquelle l'intensité laser est élevée. De cette façon, les écarts passent d'une valeur négative à une valeur positive et la plage de balayage est étendue.

La figure 18 ( $\delta \sigma$  en fonction de  $\Delta p$ ) montre les résultats obtenus : pour les cinq transitions étudiées, la fréquence de l'oscillation varie linéairement avec la pression d'hélium et pour trois d'entre elles les pentes sont identiques. Pour la transition à  $3,43 \mu$ , la courbe n'est linéaire que jusqu'à une pression de l'ordre de 4 torr, elle semble s'incurver pour des pressions supérieures : ce phénomène peut s'expliquer par une dissymétrie des profils, liée à l'augmentation de la pression.

La pression initiale dans le tube à pression variable et la pente de la droite sont indiquées pour les cinq raies étudiées dans le tableau ci-après:

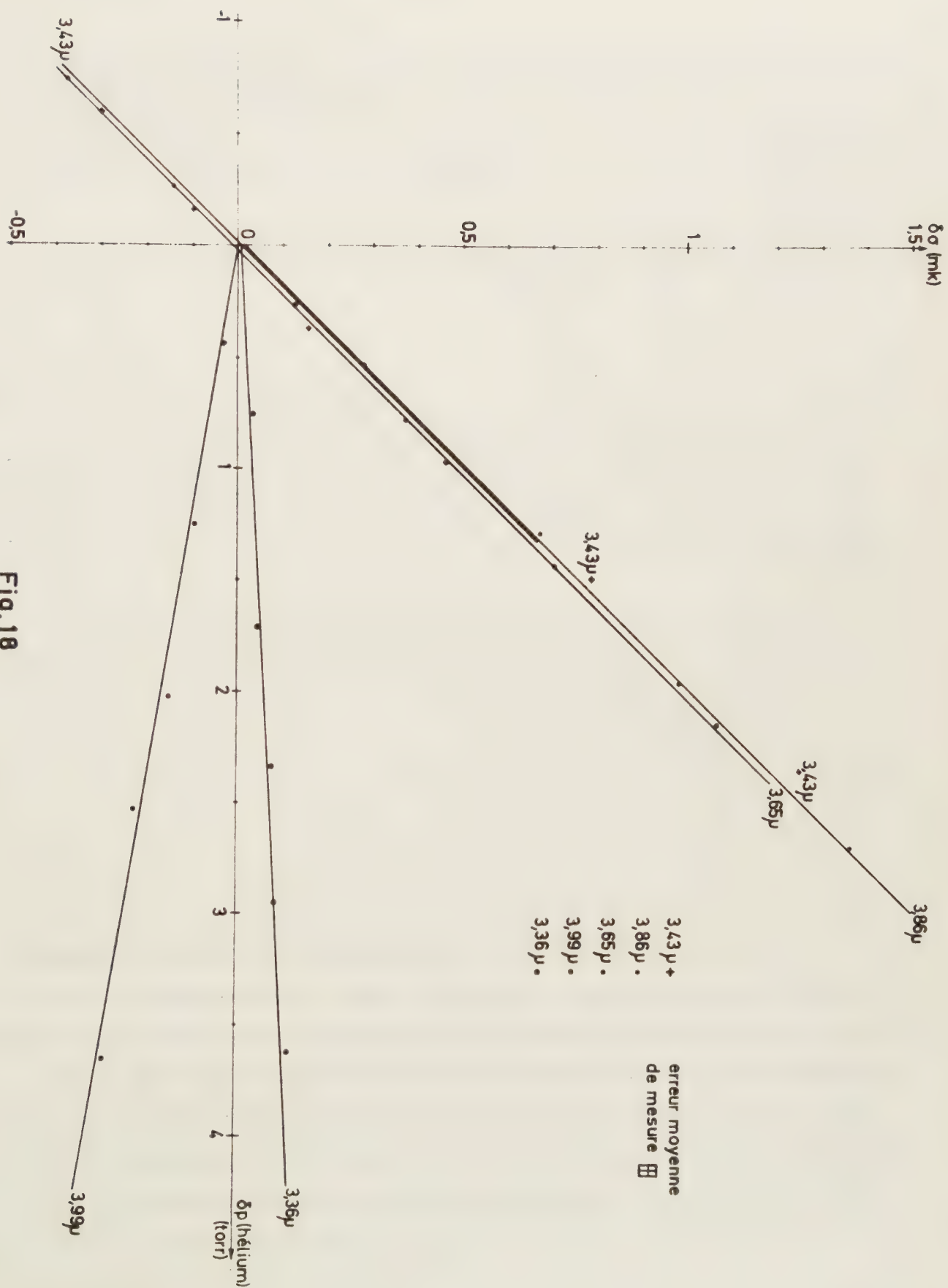


Fig. 18

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | Pression de Xe<br>(torr) | Pression de He<br>(torr) | $\delta\sigma/\Delta p$<br>(mk/torr) |
|------------------------|--------------------------|--------------------------|--------------------------------------|
| 3,36                   | 0,200                    | 0                        | 0,03                                 |
| 3,43                   | 0,062                    | 2,46                     | 0,50                                 |
| 3,65                   | 0,046                    | 2,00                     | 0,50                                 |
| 3,86                   | 0,040                    | 0                        | 0,50                                 |
| 3,99                   | 0,146                    | 0                        | - 0,09                               |

Pour toutes les transitions sauf celle à 3,99  $\mu$ , les écarts se font vers le bleu pour une augmentation de pression d'hélium. Des enregistrements effectués à dilution différente n'ont montré aucune variation de  $\delta\sigma/\Delta p$ .

Les mécanismes responsables des déplacements en fonction de la pression sont des processus par collisions dont nous pouvons considérer les types suivants :

- 1°) Xe<sup>\*</sup> - électron
- 2°) Xe<sup>\*</sup> - Xe
- 3°) Xe<sup>\*</sup> - He<sup>\*</sup>
- 4°) Xe<sup>\*</sup> - He

(l'astérisque indique que l'atome est dans un état excité).

Les mécanismes 1 et 3 sont sensibles à la densité électronique moyenne dans la décharge, ce qui nous conduit à les rejeter. Au contraire les mécanismes 2 et 4 doivent, selon les théories habituellement considérées (47), conduire à des déplacements proportionnels à la densité du gaz et donc à la pression de xénon ou d'hélium. Nous n'avons trouvé aucune explication simple pour rendre compte des variations de  $\delta\sigma/\Delta p$  d'une raie à l'autre, en particulier dans le cas de la transition à 3,99  $\mu$ .

# CHAPITRE III - AMPLIFICATION OU ABSORPTION D'UN FAISCEAU LASER

## PAR UN MILIEU GAZEUX-

### ANALYSE DIRECTE DES PROFILS DE RAIES.

Notre méthode d'analyse est l'analogue d'une méthode classique d'absorption mais dans laquelle la lumière excitatrice est émise par un laser à gaz.

#### I - PRINCIPE DE LA METHODE

La source à étudier est un tube à décharge traversé par un faisceau laser. Suivant les conditions de la décharge, le flux incident est soit amplifié, soit absorbé. Si par un procédé quelconque, on fait varier la fréquence de l'onde incidente, on décrit le profil spectral de la transition étudiée (fig. 19).

L'utilisation d'un laser comme source de lumière excitatrice présente quelques particularités. Si le laser est monomode, la radiation qu'il émet est très monochromatique : la fonction d'appareil se réduit presque à un pic de Dirac et la résolution de l'expérience est pratiquement infinie. De plus, l'intensité de l'oscillation peut être élevée ce qui permet l'étude de l'amplification ou de l'absorption dans de bonnes conditions de luminosité. Par contre, les radiations laser émises en continu par les gaz rares sont peu nombreuses, le plus souvent situées dans l'infrarouge et la variation de fréquence du flux incident ne peut être obtenue en général que dans un petit domaine spectral autour du centre de chaque raie. En conséquence, la méthode considérée ne peut être appliquée qu'à des problèmes bien particuliers de spectroscopie atomique.

Dans notre expérience, la variation de fréquence du flux incident est produite par le déplacement longitudinal de l'un des miroirs de la cavité résonnante. L'oscillation laser décrit alors un certain profil spectral sur les modes successifs  $T.E.M. k, 0, 0, k-1, 0, 0, k-2, 0, 0, \dots$  ; la plage de balayage, très réduite, dépasse difficilement quelques largeurs Doppler.

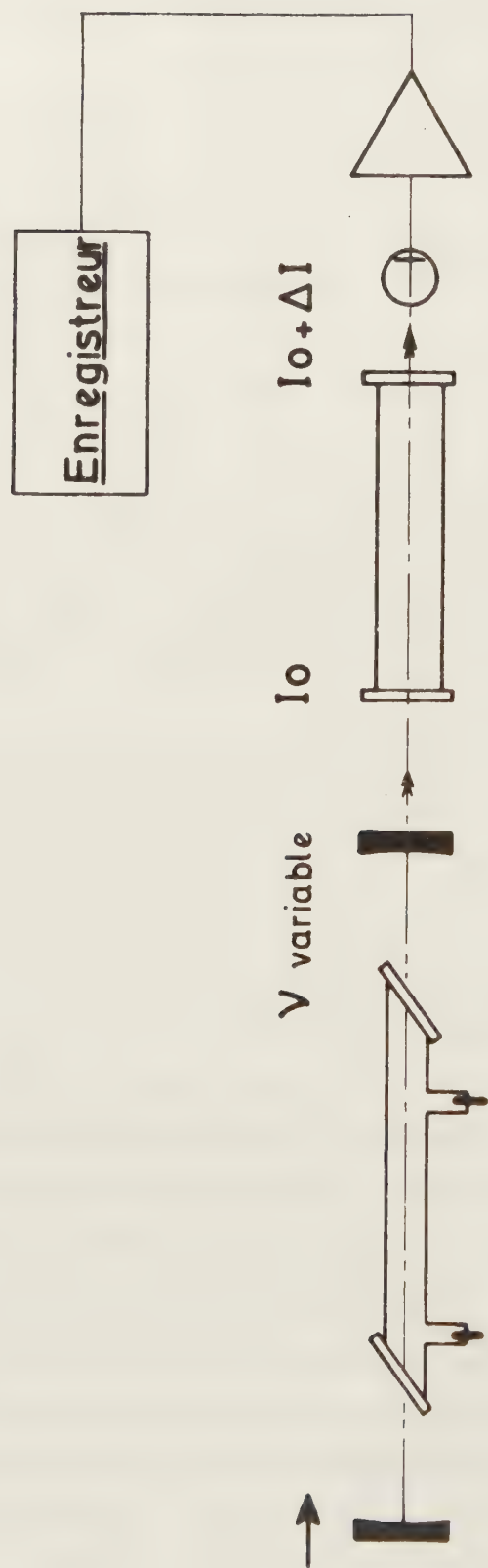


Fig. 19

Soient  $I_0(\nu)$  le flux de l'onde incidente,  $\alpha(\nu)$  le coefficient d'amplification ou d'absorption de la raie dans le tube à décharge (nous comptons  $\alpha(\nu)$  positif dans le cas de l'amplification et négatif dans le cas de l'absorption) et  $L$  la longueur utile de la décharge. Après la traversée du tube, le flux devient :

$$I(\nu) = I_0(\nu) \exp (\alpha(\nu).L) \quad \text{d'où}$$

$$\alpha(\nu) = \frac{1}{L} \text{Log} \frac{I(\nu)}{I_0(\nu)}$$

A partir de l'enregistrement de  $\frac{I(\nu)}{I_0(\nu)}$  en fonction de la fréquence, il est difficile de reconstituer  $\alpha(\nu)$  car  $I(\nu)$  diffère en général trop peu de  $I_0(\nu)$ . Il est plus commode de n'enregistrer que la quantité  $\Delta I(\nu) = I(\nu) - I_0(\nu)$  ce qui, par ailleurs, élimine certaines fluctuations de la source. On a alors :

$$\alpha(\nu) = \frac{1}{L} \text{Log} \left( 1 + \frac{\Delta I(\nu)}{I_0(\nu)} \right)$$

La mesure de  $I_0(\nu)$  et l'enregistrement de  $\Delta I(\nu)$  permettent donc de reconstituer le profil  $\alpha(\nu)$ . Pour faciliter le dépouillement, on peut tenter de rendre  $I_0(\nu)$  indépendant de la fréquence; de plus, si  $\alpha(\nu).L$  est petit, on peut écrire :

$$\alpha(\nu) = \frac{1}{L} \frac{\Delta I(\nu)}{I_0}$$

Dans ces conditions, l'enregistrement de  $\Delta I(\nu)$  donnerait directement, sans correction, le coefficient d'amplification ou d'absorption de la raie en fonction de la fréquence : on peut chercher à le comparer à un profil théorique. Pour une raie simple, isolée et sans structure,  $\alpha(\nu)$  résulte, en

première approximation, de la superposition de plusieurs effets indépendants :  
élargissement par radiation et par chocs, élargissement par effet Doppler.

L'élargissement par radiation se traduit par une courbe de Lorentz:

$$I(\nu - \nu_0) = I_1 \left( 1 + \frac{4(\nu - \nu_0)^2}{\Delta\nu_N^2} \right)^{-1} = L_1$$

où  $\nu_0$  est la fréquence centrale de la transition.

$\Delta\nu_N$  est la largeur à mi-hauteur .  $\Delta\nu_N = \gamma_{ab} = \frac{1}{2} (\gamma_a + \gamma_b)$  ,  $\gamma_a$  et  $\gamma_b$   
étant les largeurs naturelles des deux niveaux de la transition.

L'élargissement par collisions entre atomes se traduit également,  
tant que la pression reste faible, par une courbe de Lorentz, dont la largeur  
à mi-hauteur  $\Delta\nu_p$  est fonction de la pression :

$$I(\nu - \nu_0) = I_2 \left( 1 + \frac{4(\nu - \nu_0)^2}{\Delta\nu_p^2} \right)^{-1} = L_2$$

Tant que la pression reste faible, on peut bloquer les deux causes  
d'amortissement qui, par convolution, donnent une fonction de Lorentz unique  
 $L(L = L_1 * L_2)$  , de largeur  $\Delta\nu_N + \Delta\nu_p$ . Aux pressions plus élevées, de nou-  
veaux phénomènes peuvent apparaître : déformation du profil, déplacement de  
la fréquence centrale  $\nu_0$  ...

L'élargissement par effet Doppler se traduit par une courbe de  
Gauss:

$$I(\nu - \nu_0) = I_3 \exp - \frac{(\nu - \nu_0)^2}{(0,6 \Delta\nu_D)^2} = G$$

où  $\Delta\nu_D$  : largeur à mi-hauteur ;  $\frac{\Delta\nu_D}{\nu_0} = 2 \sqrt{\frac{2RT}{MC^2} \text{Log } 2} = 7,16 \cdot 10^{-7} \sqrt{\frac{T}{M}}$

Le profil  $\alpha(\nu)$  de la raie résulte de la convolution des fonctions L et G ; sa largeur à mi-hauteur peut se calculer à partir de  $\Delta\nu_H + \Delta\nu_F$  et de  $\Delta\nu_D$  (48). Inversement si l'on connaît  $\alpha(\nu)$  et  $\Delta\nu_D$ , on peut évaluer la quantité  $\Delta\nu_H + \Delta\nu_F$ . L'extrapolation à pression nulle de la courbe donnant la largeur de la courbe de Lorentz, en fonction de la pression est l'un des moyens utilisés pour évaluer la largeur naturelle de la raie (49).

La distribution précédente (profil de Voigt) est une hypothèse de départ qu'il faut vérifier; pour obtenir de bons résultats, il est nécessaire que le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$  de l'expérience soit élevé. Dans une méthode classique,  $\alpha(\nu)$  est convolué par une fonction d'appareil (fonction d'Airy en général) : cette fonction est difficile à connaître avec précision et elle introduit une incertitude supplémentaire en particulier dans les pieds du profil spectral, où la courbe de Lorentz se différencie le plus de la courbe de Gauss.

Comment cette méthode peut-elle s'appliquer à l'étude des structures hyperfines et des déplacements isotopiques? Si les composantes sont résolues dans la source, la mesure de la position relative de l'axe des courbes enregistrées donne directement la valeur de la structure. Si les composantes ne sont pas résolues dans la source, le profil enregistré est complexe. Pour obtenir la structure, il faut tirer parti des connaissances que l'on possède a priori : l'analyse se fait au mieux lorsque l'amplification est peu élevée et que l'on connaît la forme du profil correspondant à une raie sans structure.

Pour les gaz rares, les structures hyperfines sont en général grandes et la plage de balayage que nous pouvons actuellement obtenir est trop réduite. Par contre, les écarts isotopiques sont petits (cf. chapitre II), en général inférieurs à la largeur Doppler. Si l'on dispose d'isotopes purs ou suffisamment enrichis, une solution simple consiste à les exciter dans des sources séparées, ici deux tubes à décharge "en parallèle" : l'amplification ou l'absorption peuvent être élevées tant que l'on ne s'intéresse qu'à la position de raies symétriques sans structure. Si l'on ne dispose que d'un mélange des isotopes à étudier et par

ailleurs d'un autre isotope à l'état pur, il est intéressant d'utiliser cet isotope comme référence : le profil relatif à l'isotope pur sert de repère et facilite l'analyse du profil complexe relatif au mélange.

Nous avons réalisé l'expérience, avec deux tubes à décharge en parallèle, excités simultanément et traversés chacun par un faisceau issu du laser.

Pour faciliter le dépouillement, un troisième faisceau issu du laser est utilisé pour faire  $I_0(\gamma) = \text{constante}$  dans la plage de balayage étudiée : ceci est obtenu à l'aide d'un asservissement électronique qui réagit sur l'intensité du courant de décharge qui traverse le laser. La plage de balayage aurait, en première approximation, pour un isotope unique, une largeur comparable à la largeur Doppler : pour l'élargir, nous avons plusieurs possibilités :

- utiliser l'effet isotopique avec un mélange tel que les isotopes extrêmes soient suffisamment abondants,
- ajouter un gaz étranger, hélium par exemple, au gaz étudié de façon à augmenter la largeur par collisions. Ce procédé n'est pas toujours efficace et peut entraîner un déplacement de la raie dans un sens qui n'est pas forcément favorable,
- utiliser l'effet Zeeman.

Dans notre expérience, la variation de fréquence du flux lumineux incident est produite par le déplacement longitudinal continu de l'un des miroirs de la cavité. Ainsi que nous l'avons vu au chapitre II, la fréquence de l'onde laser n'est pas confondue, en général, avec la fréquence de résonance de la cavité; en conséquence, l'échelle des fréquences présente une distorsion qui introduirait dans certains cas une erreur trop importante pour que l'expérience garde un sens. Nous avons alors été conduits à utiliser un quatrième faisceau issu du laser pour étalonner l'échelle des nombres d'onde, avec un étalon Fabry-Perot de grande épaisseur. A différence de marche constante, celui-ci donne quelques franges de référence dans la plage de balayage; en faisant varier la différence de marche, nous avons la possibilité de multiplier le nombre de ces franges et de contrôler ainsi de plus près la fréquence de l'onde incidente.

En définitive, dans notre méthode nous utilisons deux faisceaux de mesure et deux faisceaux de référence. La principale limitation réside actuellement dans la largeur de la plage de balayage qui reste inférieure à une dizaine de mk (à 300 MHz). Avant d'exposer les résultats obtenus, nous allons décrire le dispositif expérimental, les conditions d'enregistrement des profils et les diverses sources d'erreur. Nous examinerons dans le dernier paragraphe les différents effets qui altèrent l'échelle des fréquences lorsqu'on fait varier continuellement la longueur de la cavité d'un laser monomode.

## II - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nous allons décrire successivement le laser monochromateur et étudier les deux faisceaux de mesure et les deux faisceaux de référence.

### II - A - Laser monochromateur

Le rôle de celui-ci est de fournir quatre faisceaux monochromatiques aussi identiques que possible, de fréquence variable à l'intérieur de la structure de la transition atomique. Il est en fait constitué de deux tubes concentriques : le plus petit, de diamètre intérieur 2,5mm est le tube à décharge proprement dit et le plus gros sert à la fois de support et de réserve de gaz. Il est fermé par des fenêtres en fluorine, l'une à l'incidence de Brewster, l'autre à l'incidence de  $45^\circ$  : cette dernière est légèrement prismatique et fournit, par réflexion vitreuse, quatre faisceaux identiques sortant deux à deux dans des directions opposées. Le système de déplacement longitudinal de l'un des miroirs est identique à celui que nous avons décrit dans le chapitre précédent. Les miroirs utilisés sont recouverts d'un revêtement opaque en or ou d'un revêtement multidiélectrique sélectif.

Dans cette méthode, le sens de l'échelle des fréquences est déterminé par le sens de déplacement du miroir et nous n'avons pas à faire varier la longueur de la cavité dans de larges proportions. Nous pouvons donc utiliser une cavité confocale pour laquelle les modes de vibration sont bien séparés en

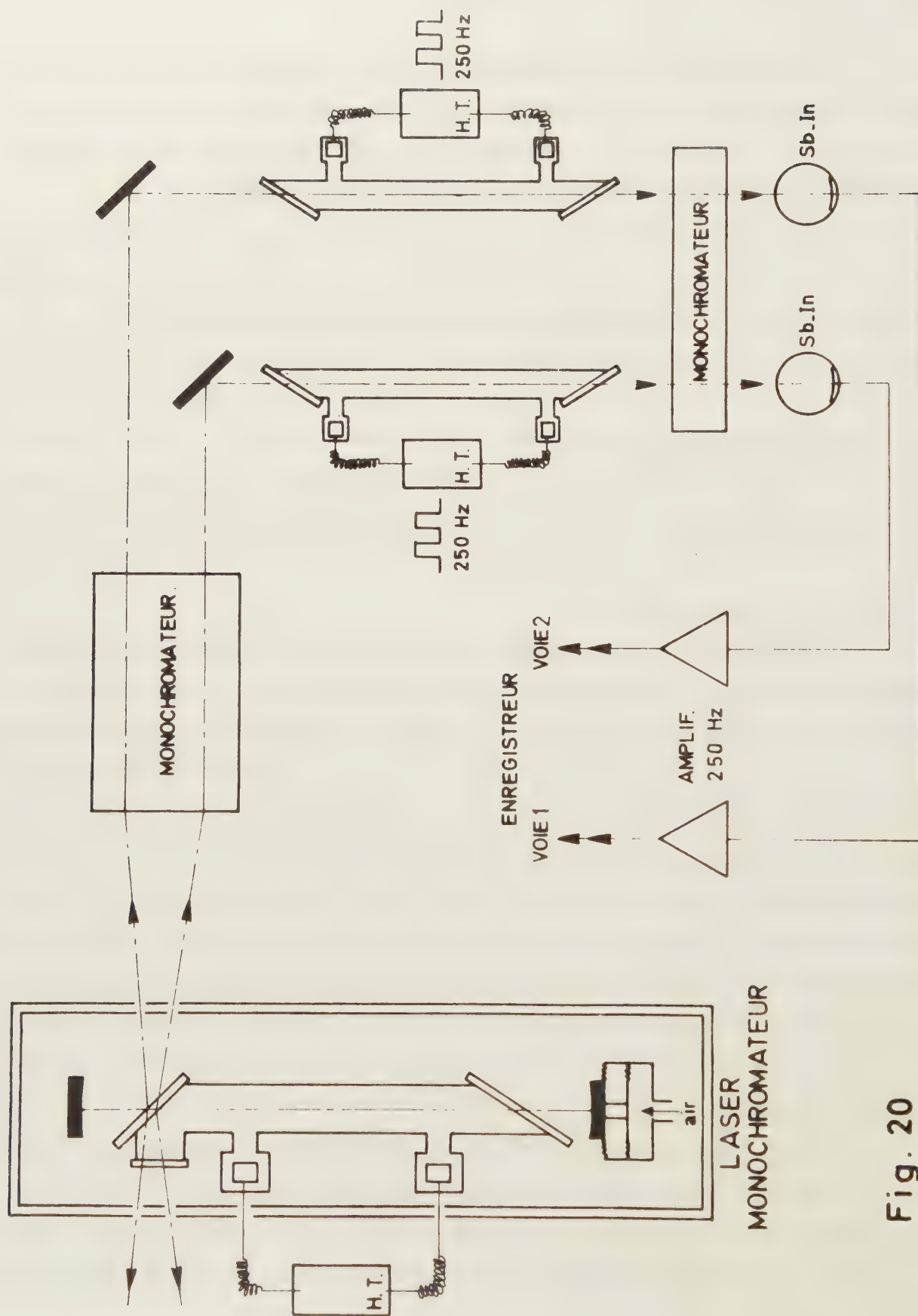


Fig. 20

fréquence. Il est essentiel de n'exciter qu'un seul mode T. E. M.  $k, 0, 0$ . Pour cela, nous avons la possibilité de faire varier le seuil de l'effet laser avec des lamelles disposées à  $90^\circ$  l'une de l'autre et formant un diaphragme de dimension réglable; elles sont introduites entre l'une des fenêtres de fluorine et l'un des miroirs \*. La distance entre les miroirs, égale à leur rayon de courbure, est de 0,40m ; l'intervalle entre les modes successifs T. E. M.  $k, 0, 0$  correspond dans l'échelle des nombres d'onde, à  $\Delta\sigma = 12,5 \text{ mk}$ .

Pour que les enregistrements soient de bonne qualité, il faut que la stabilité de la cavité soit plus élevée possible : la monture supportant les miroirs et le tube à décharge est en invar et les espaces fenêtre-miroir sont maintenus sous vide. Balayage bloqué et à température ambiante constante, la fréquence de la raie émise par le laser est stable; la dérive dans le temps  $\frac{\delta\sigma}{\sigma}$  est de l'ordre de  $10^{-7}$  en une heure.

## II - B - Faisceaux de mesure

Ils sont traités de façon identique, suivant le schéma de la figure 20.

Pour augmenter la résolution effective de l'expérience et notamment pour que les profils de Lorentz soient moins masqués par l'effet Doppler, il est intéressant de refroidir la décharge à une température voisine de celle de l'azote liquide : nous utilisons pour cela des tubes à décharge analogues à ceux décrits au chapitre II. La longueur utile de la décharge est de 0,70 m et le diamètre intérieur du tube est de 10 mm; le remplissage des tubes est assuré par deux bancs à vide indépendants et la mesure des pressions est réalisée par deux jauges de Pirani également indépendantes.

Pour ne détecter que la partie amplifiée ou absorbée  $\Delta I(\nu)$  du signal et non le signal laser lui même, il faut moduler sélectivement le signal utile :

\* A la surface des miroirs, le rayon du mode dominant est donné par la relation  $w = (L\lambda/\pi)^{1/2}$  (50).

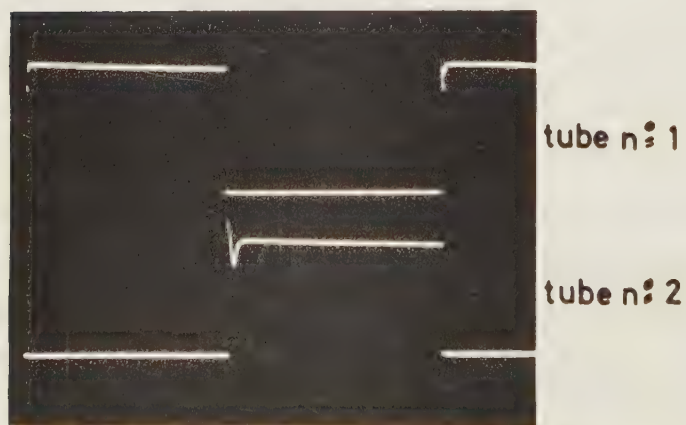
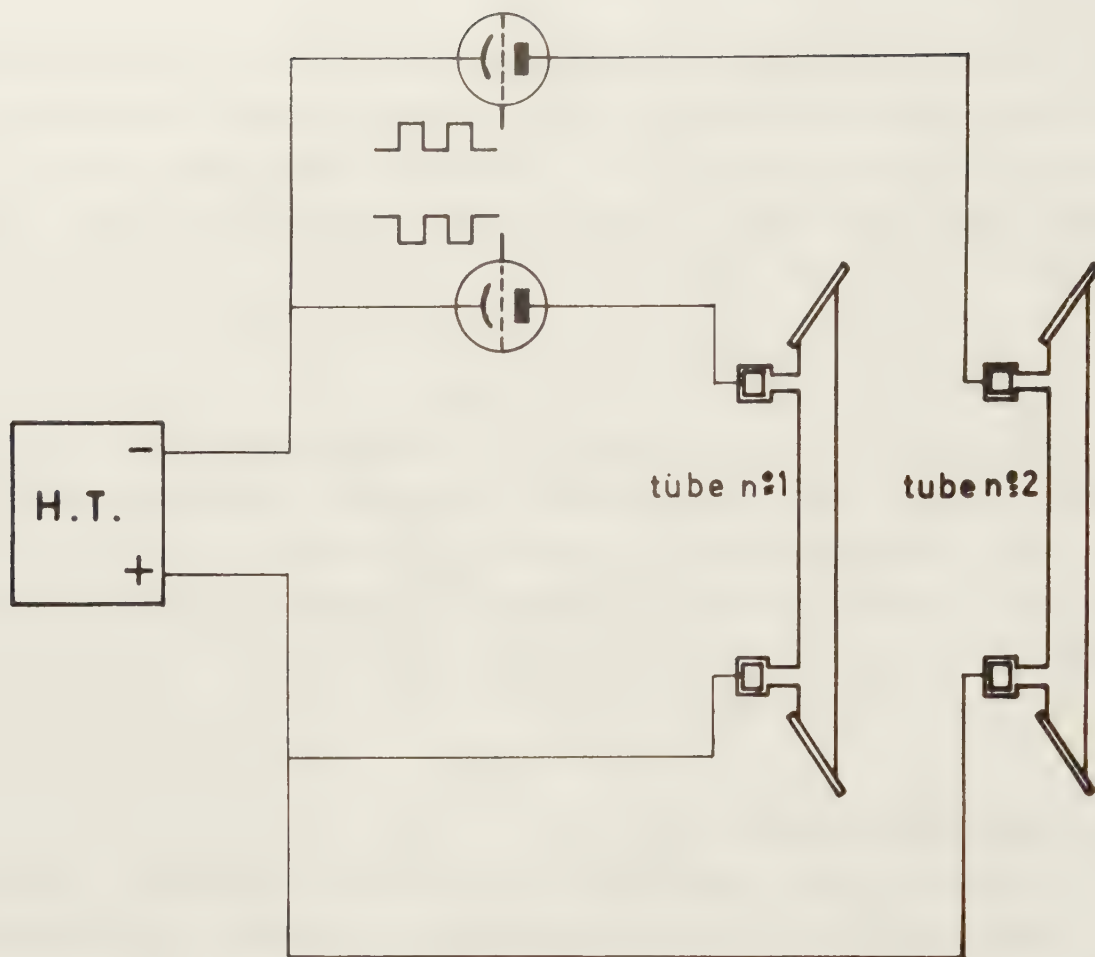


Fig. 21 Excitation des tubes à décharge

nous utilisons une modulation du courant excitateur. Le signal reçu par la cellule est alors composé d'une partie continue et d'une partie alternative, la seule à être amplifiée par l'amplificateur à détection synchrone employé. Les deux tubes sont alimentés par l'intermédiaire de deux triodes haute-tension (fig. 21) dont la polarisation de grille, commandée par des signaux carrés à 250 Hz, bloque ou laisse passer le courant. Les tubes sont excités en opposition de phase à partir d'une source de haute-tension unique dont le débit reste ainsi constant. La fréquence de modulation que nous avons choisie, 250 Hz, est assez grande pour que le bruit de courant de la cellule soit négligeable et assez petite pour que la partie instable qui suit immédiatement l'allumage soit de faible importance et n'introduise pas de parasites gênants lors de la détection (fig. 21).

Dans la mesure du possible, nous avons utilisé des cellules photo-résistantes à l'antimonure d'indium, refroidies à la température de l'azote liquide, dont les performances sont nettement supérieures à celles des cellules au germanium dopé à l'or mais dont le domaine de sensibilité est plus limité ( $\lambda < 5,6 \mu$ ).

Compte tenu des fluctuations de la fréquence de modulation et de la température ambiante, la précision globale de l'ensemble de la détection et de l'amplification est supérieur à  $0,5 \cdot 10^{-2}$ .

## II - C - Faisceaux de référence

La figure 22 montre le trajet suivi par les faisceaux. Tous deux sont détectés par une cellule au germanium dopé à l'or et transmis à un amplificateur à détection synchrone. La fréquence de modulation choisie est de 750 Hz, comme dans l'expérience décrite au chapitre II.

Le premier faisceau est utilisé pour asservir l'intensité du laser\*.

\* La réalisation de la partie électronique a fait l'objet d'une thèse de Doctorat d'Université, par J. SEGUIN (34).

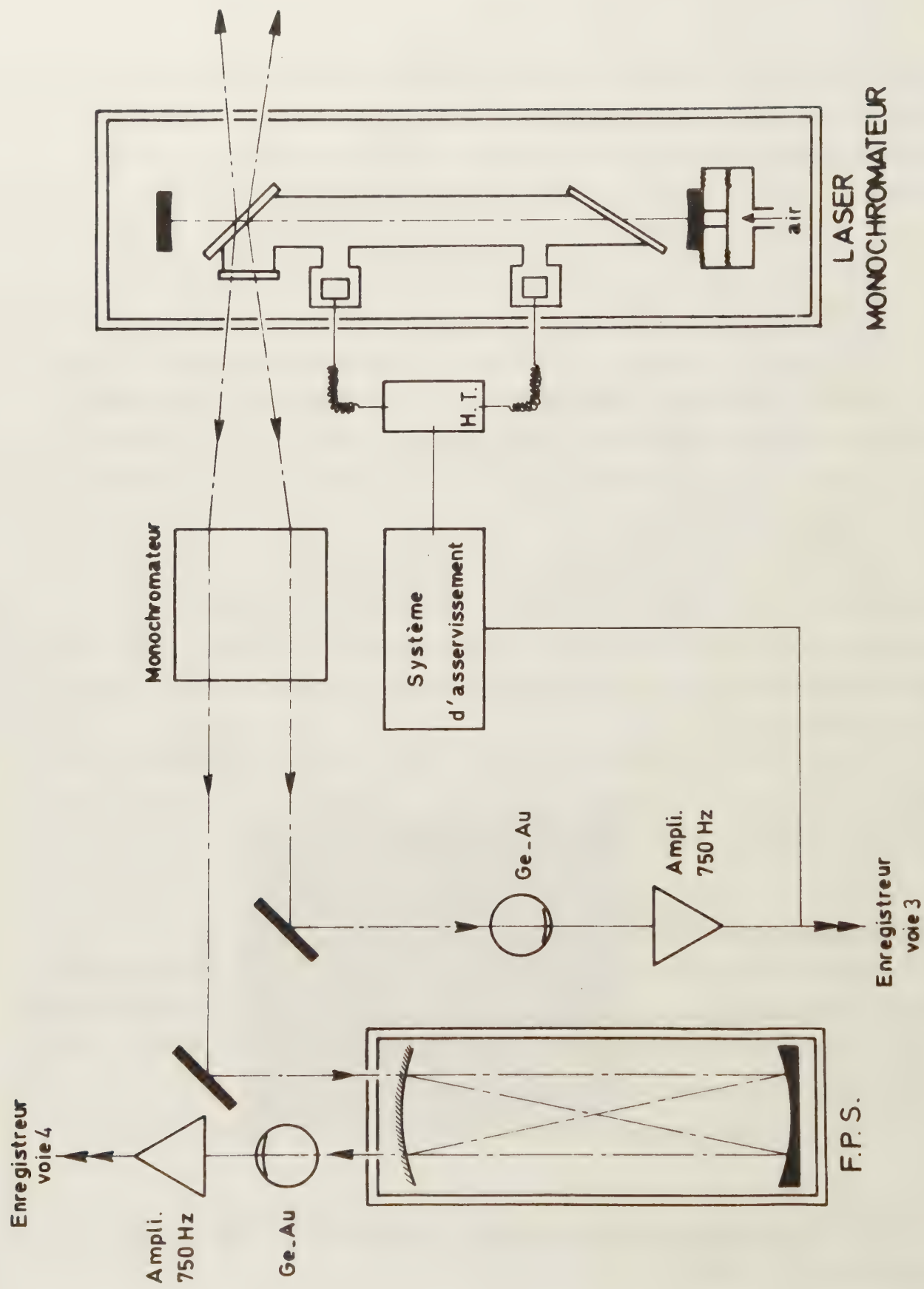
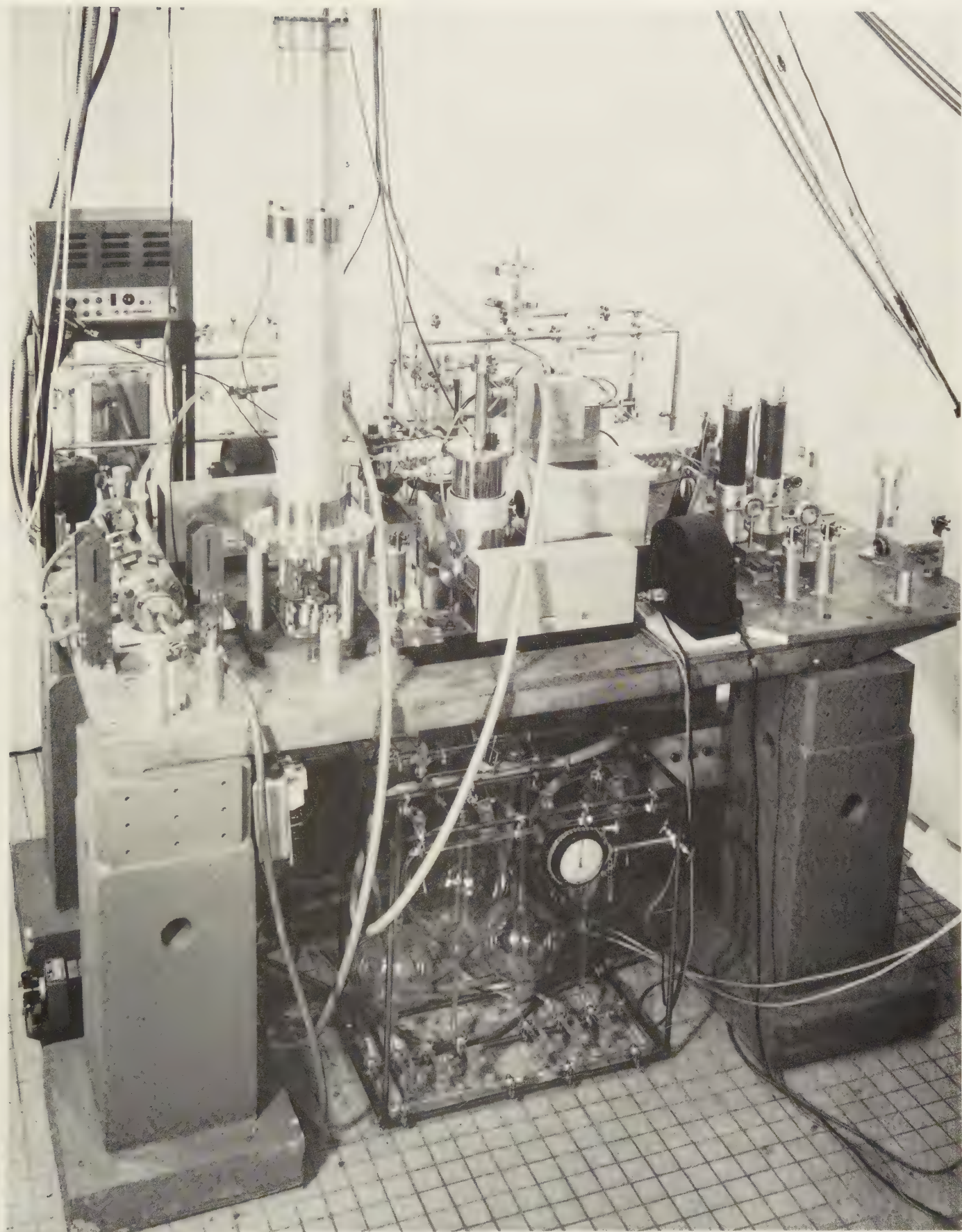


Fig. 22



Ce dernier est alimenté par une source de haute-tension dont le débit est réglé par une tension de commande extérieure  $V_C$ . L'asservissement est réalisé à l'aide d'un amplificateur différentiel (fig. 23) qui reçoit deux tensions : une tension de référence,  $V_R$ , ajustable et la tension  $V_S$  venant de l'amplificateur à détection synchrone. Sa tension de sortie est envoyée directement dans la source haute-tension pour commander le débit dans le tube à décharge du laser.

Lors de l'asservissement, on choisit  $V_R$  inférieure à  $V_M$ , valeur maximale que prendrait  $V_S$  au cours d'un balayage à courant constant.

- Tant que  $V_S < V_R$ , l'amplificateur différentiel envoie sur la source de haute-tension, une tension de commande  $V_C$  égale à  $V_R$ ; le courant dans le laser est constant et l'oscillation décrit normalement le profil spectral.

- Dès que  $V_S$  atteint  $V_R$ , le dispositif d'asservissement entre en jeu et stabilise la tension de sortie  $V_S$  à une valeur très peu supérieure à  $V_R$ ; la tension de commande  $V_C$  s'écrit alors :  $V_R - k(V_S - V_R)$  où  $k$  est variable. Au fur et à mesure que le balayage se poursuit, le courant dans le laser diminue puis remonte.

- Dès que  $V_S$  devient inférieure à  $V_S$ , l'asservissement ne joue plus et l'oscillation décrit normalement la fin du profil spectral.

L'asservissement ainsi obtenu n'est possible que tant que les phénomènes de saturation dans le milieu amplificateur du laser sont suffisamment faibles pour qu'à une augmentation du courant de décharge corresponde une augmentation du signal lumineux. Le gain de boucle de l'ensemble, que nous pouvons ajuster, détermine les variations de l'intensité du faisceau lumineux : si le gain est trop élevé, la décharge a tendance à osciller. Dans les conditions usuelles, il est relativement aisé de limiter les variations de  $I_0$  à une valeur relative de l'ordre de  $10^{-2}$ , d'un bout à l'autre de la plage asservie. La largeur de cette dernière dépend des transitions étudiées, du mélange isotopique contenu dans la source et de la pression du gaz d'appoint; sans élargissement par effet Zeeman, elle est inférieure à une dizaine de mk (u 300 MHz).

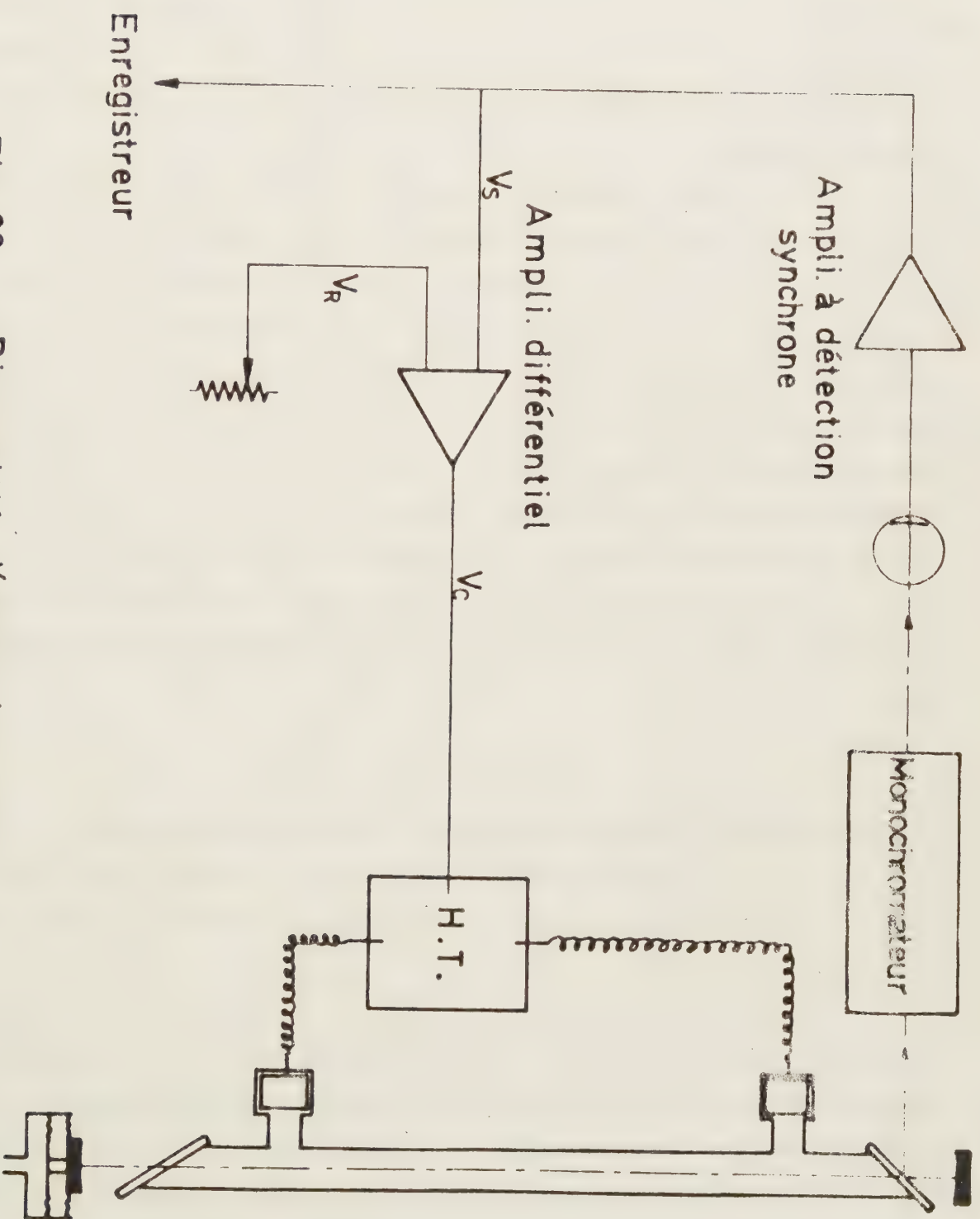


Fig. 23 Dispositif d'asservissement

Le deuxième faisceau de référence est utilisé pour l'étalonnage de l'échelle des nombres d'onde lors de la variation de longueur du laser monochromateur. Pour cela, le faisceau traverse un étalon Fabry-Perot sphérique d'épaisseur  $L = 0,90 \text{ m}$  (51); il est monté verticalement pour des raisons de commodité. Il lui correspond un intervalle entre ordres

$\delta\sigma_0 = \frac{1}{4L} = 2,78 \text{ mk}$ . Les miroirs sont montés sur un "spacer" en invar et l'ensemble est contenu dans une enceinte où il est possible de faire varier linéairement dans le temps la pression et donc la différence de marche. Dans notre expérience, le Fabry-Perot travaille en transmission : le miroir du bas sert à la fois de miroir d'entrée et de miroir de sortie tandis que le miroir du haut ne sert qu'à renvoyer la lumière. Le miroir du bas est recouvert d'un revêtement multidiélectrique de faible pouvoir réflecteur ( $R \approx 0,7$ ) et le miroir du haut est recouvert d'une couche opaque en or. Dans ces conditions, l'appareil est suffisamment lumineux et la finesse enregistrée atteint facilement la valeur 5, ce qui convient à notre problème. Nous avons pris de grandes précautions afin que la stabilité thermique de l'ensemble soit la plus élevée possible.

### III - CONDITIONS D'ENREGISTREMENT. SOURCES D'ERREUR.

A la sortie des amplificateurs à détection synchrone, les quatre signaux correspondant aux quatre faisceaux sont transmis aux quatre voies d'un enregistreur unique.

Dans notre expérience, la plage de balayage de la raie laser excitatrice est inférieure à  $10 \text{ mk}$ , la raie laser se déplaçant vers les nombres d'onde croissants. Si la différence de marche est constante dans le Fabry-Perot, les franges sont espacées, dans l'échelle des nombres d'onde, de  $\delta\sigma_0 = 2,78 \text{ mk}$  : elles sont en nombre insuffisant pour permettre un contrôle serré du balayage. Si l'on désire un tel contrôle, il est possible de les multiplier en faisant varier la différence de marche dans le Fabry-Perot. Pour cela,

$^{134}\text{Xe}$  et  $^{132}\text{Xe}$   
 $\frac{I}{I_0} = 1,10$

$\lambda = 3,3676\mu$  (5d  $[5/2]_2 \rightarrow 6p [3/2]_1$ )  
 $\Delta\sigma = 12,5 \text{ mK}$      $\delta\sigma = (1,35 \pm 0,03) \text{ mK}$      $\delta\sigma_0 = 2,78 \text{ mK}$

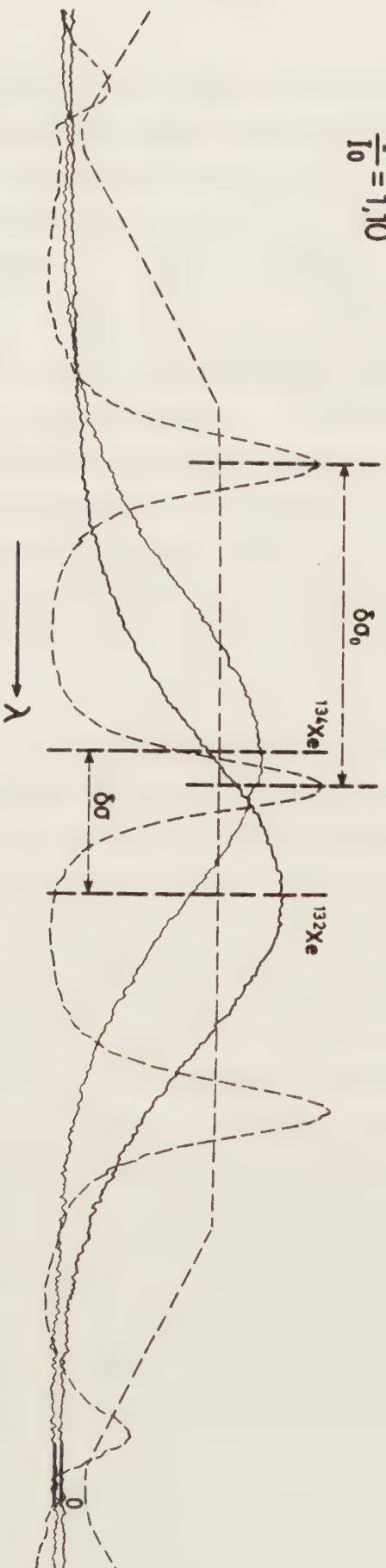


Fig . 24

on peut faire une lente entrée d'air dans l'enceinte préalablement vidée : la différence de marche augmente et les franges d'interférence se déplacent vers les nombres d'onde décroissants. L'intervalle entre ordres réel,  $\delta\sigma'_0$ , dépend de la valeur relative des vitesses de balayage du laser et du Fabry-Perot. Nous avons ainsi deux possibilités de travail pour déterminer les écarts isotopiques ou analyser les profils :

- Balayage du laser, à Fabry-Perot fixe (à pression constante, différence de 0),
- Balayages simultanés du laser et du Fabry-Perot.

Il est de plus essentiel de déterminer  $I_0$  pour chaque faisceau de mesure. Des défauts de linéarité dans les balayages ainsi que de légères variations de  $I_0$  entraînent des erreurs que nous allons considérer dans le paragraphe suivant ; nous examinerons par la suite l'erreur introduite par l'emploi de deux sources séparées.

### III - A - Balayage du laser, à Fabry-Perot fixe

On enregistre les profils relatifs aux deux sources, la différence de marche  $\Delta$  dans le Fabry-Perot restant constante. Sur l'enregistrement, l'intervalle entre deux franges successives,  $i$ , correspond à  $\delta\sigma_0 = \frac{1}{\Delta} = 2,78 \text{ mk}$  (fig. 24).

La mesure de  $\Delta$  est faite avec une précision suffisante (on mesure l'épaisseur de l'étalon à mieux que  $5 \cdot 10^{-5}$ ), elle n'introduit pas d'erreur appréciable. La stabilité de l'ensemble laser-étalon Fabry-Perot, balayages bloqués, est très élevée : nous avons pu estimer la dérive  $\frac{\delta\sigma}{\sigma}$  dans le temps à une valeur de l'ordre de  $10^{-7}$  par heure. La stabilité du Fabry-Perot seul étant certainement supérieure, l'erreur dans la détermination des écarts isotopiques ou l'analyse des profils serait très faible, si le balayage du laser était rigoureusement linéaire dans la plage asservie. En fait, il n'est pas possible de s'en assurer par ce procédé, si bien que nous n'obtenons qu'un très bon ordre de grandeur ; si l'on désire une bonne précision, il est nécessaire de faire défiler les franges du Fabry-Perot.

### III - B - Balayages simultanés du laser et du Fabry-Perot

La différence de marche  $\Delta$  dans le Fabry-Perot est variable; sur l'enregistrement, les franges sont espacées d'une quantité  $i'$  correspondant à un intervalle entre ordres  $\delta\sigma'_0$  (fig. 25). Au cours du balayage du laser, ces deux quantités peuvent varier (si le balayage était linéaire, nous aurions la relation simple entre  $\delta\sigma_0$  et  $\delta\sigma'_0$  :  $\delta\sigma'_0 = \delta\sigma_0 \frac{i'}{i}$ ) et pour les déterminer nous avons plusieurs possibilités : celle que nous avons utilisée consiste à arrêter le balayage du laser.

- Lorsque seul Fabry-Perot défile, il est aisé de montrer que l'accroissement de différence de marche nécessaire au passage d'une frange à l'autre vaut  $\delta\Delta_0 = \frac{1}{\sigma}$ , il lui correspond sur l'enregistrement un interfrange  $i''$ ,

- Lorsque les deux appareils défilent simultanément, nous avons la relation suivante, correspondant au passage d'une frange à l'autre :

$$I = \delta\Delta \cdot \sigma + \Delta \cdot \delta\sigma \quad (\text{à partir de } k = \sigma \cdot \Delta)$$

$$\delta\Delta = \frac{I - \Delta \cdot \delta\sigma'_0}{\sigma} = \delta\Delta_0 \left(1 - \frac{\delta\sigma'_0}{\delta\sigma_0}\right)$$

Ici,  $\delta\Delta$  correspond au passage d'une frange (interfrange  $i'$ ) et  $\delta\Delta_0$  correspond au passage d'une frange (interfrange  $i''$ ) lorsque seul le Fabry-Perot défile. On a ainsi :

$$\delta\sigma'_0 = \delta\sigma_0 \left(1 - \frac{i'}{i''}\right)$$

Connaissant  $\delta\sigma_0$  et  $i''$  avec précision, nous pouvons déterminer  $\delta\sigma'_0$  pour chaque frange d'interférence et contrôler efficacement le balayage du laser. Finalement tout se ramène à la détermination de  $i''$ . Elle est faite lorsque le laser est bloqué : si nous supposons que durant l'enregistrement des franges, le laser n'a pas évolué et que la vitesse de balayage du Fabry-Perot reste suffisamment constante, il suffit d'enregistrer quelques franges successives pour connaître  $i''$  avec précision. En

$$\begin{array}{l}
 {}^{134}\text{Xe} \text{ et } {}^{132}\text{Xe} \quad \lambda = 3,3676 \mu \quad (5d \ [5/2]_2 \rightarrow 6p \ [3/2]_1) \\
 \frac{I}{I_0} = 1,10 \quad \delta\sigma = (1,35 \pm 0,03) \text{ mK} \quad \delta\sigma'_0 = 0,92 \text{ mK} \quad \Delta\sigma = 12,5 \text{ mK}
 \end{array}$$

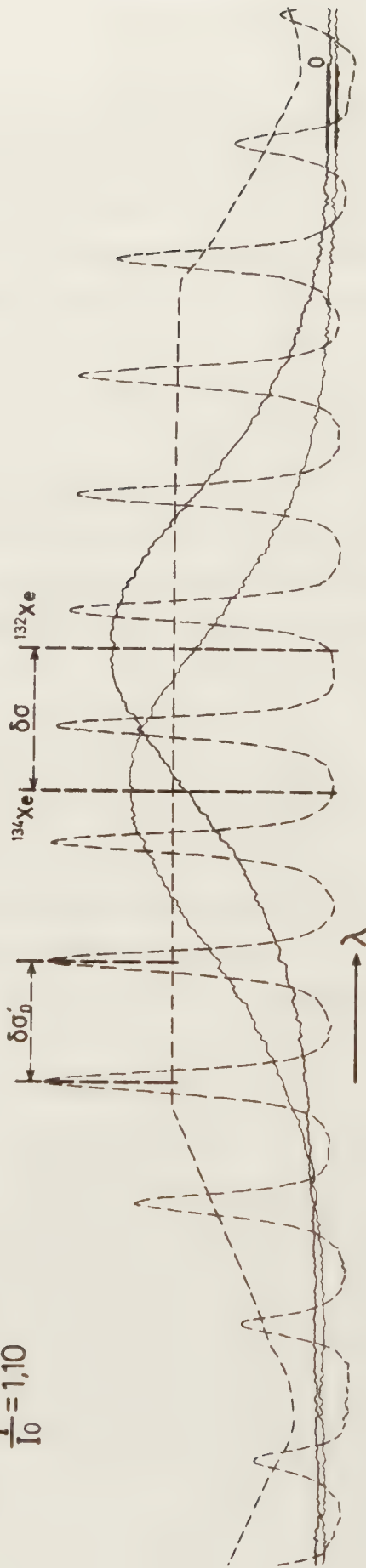


Fig. 25

fait, l'incertitude sur  $i''$  vient principalement du débit de la fuite qui n'est contrôlé qu'à  $0,5 \cdot 10^{-2}$  près. Des variations aléatoires de vitesse de la fuite n'entraînent certainement pas d'erreurs supérieures à  $10^{-2}$  mk, dans des conditions normales de travail. Des variations systématiques de vitesse entraînent au contraire une erreur proportionnelle à l'écart mesuré et qui croît avec le nombre des franges utilisées : ceci nous conduit à limiter la vitesse de balayage du Fabry-Perot. Au cours de notre étude, nous avons constaté qu'à la précision des mesures, quelque soit le nombre des franges, celles-ci sont équidistantes dans la partie asservie de la plage de balayage. Cette propriété facilite le dépouillement; nous avons utilisé une valeur de  $\delta\sigma'_0$  peu différente de  $\delta\sigma_0/5$  donnant un contrôle suffisamment serré du balayage. Dans ces conditions, l'erreur de mesure peut être estimé à  $10^{-2}$  mk.

Il est également possible de mesurer la vitesse moyenne de défilement des franges qui sont comprises entre deux ordres successifs du laser. Par exemple, on peut déterminer le nombre de franges comprises entre les axes de deux profils successifs relatifs à la même source ce qui donne directement une valeur moyenne précise de  $i''$ . Ce procédé est relativement complexe à mettre en oeuvre et n'élimine pas les erreurs dues aux fluctuations de  $i''$  autour de sa valeur moyenne. Il semble préférable d'étalonner la différence de marche du Fabry-Perot à l'aide de franges données par un faisceau lumineux issu d'un laser monomode asservi en fréquence. C'est vers cette solution que nous allons nous orienter.

### III - C-Mesure de $I_0$

La mesure de  $I_0$  est faite avant chaque enregistrement des profils, en modulant mécaniquement les faisceaux de mesure à 250 Hz, les tubes à décharge n'étant pas excités. Nous avons ainsi constaté que l'intensité dans les faisceaux de mesure n'est pas aussi constante que dans le faisceau de référence directement asservi : on trouve des variations aléatoires et des variations reproductibles d'intensité. Les premières, toujours de faible importance, peuvent

être assimilées à un bruit qui limite la précision finale de l'expérience.

L'utilisation des franges de Fabry-Perot permet de vérifier que l'on a bien éliminé les modes parasites ou d'éventuelles composantes de structure hyperfine. Cette élimination étant faite, on constate qu'il subsiste encore de légères variations reproductibles de  $I_0$  : Un centrage soigné des différents faisceaux permet de les réduire à moins de 2% de l'intensité totale sur l'ensemble de la plage asservie. La structure géométrique des modes dépend d'une façon générale de l'intensité de l'oscillation laser et de l'intensité du courant de décharge : au cours du balayage, ces modifications de la structure des modes peuvent entraîner, par une diaphragmation différente des faisceaux de mesures, de légères variations de  $I_0$ .

Pour l'analyse des profils, il est bien entendu possible de tenir compte du profil réel de  $I_0$  ; pour une mesure de positions ce n'est pas nécessaire tant que l'on ne recherche pas une précision très élevée. En effet considérons l'erreur qui résulterait d'une augmentation régulière de  $I_0$  avec la fréquence : supposons que le profil  $\alpha(\nu)$  soit gaussien et relatif à une raie du xénon, de longueur d'onde  $3 \mu$  :

$$I(\sigma - \sigma_0) = I_0 \exp - \frac{(\sigma - \sigma_0)^2}{(0,6 \Delta\sigma_0)^2} \quad \text{avec} \quad \sigma_0 = \frac{\nu_0}{c}, \quad \Delta\sigma_0 \approx 3 \text{ mk.}$$

Le procédé de dépouillement utilisé revient pratiquement à déterminer le centre de la raie  $\sigma'_0$  par la relation :

$$\int_{-\infty}^{\sigma'_0} I d\sigma = \int_{\sigma'_0}^{\infty} I d\sigma$$

$(\sigma'_0 - \sigma_0)$  est l'écart résultant de cette variation de  $I_0$  : pour une variation de l'ordre de 2% sur une largeur de 6 mk (soit approximativement le double de la largeur Doppler), on peut montrer que  $(\sigma'_0 - \sigma_0)$  est inférieur à  $0,01_5$  mk.

On peut également calculer l'erreur qui résulterait d'une variation de  $I_0$  se produisant au centre du profil  $\alpha(\gamma)$ . Avec les mêmes hypothèses sur la nature du profil, on peut montrer que le déplacement du centre de gravité est de la forme :

$$\delta = \frac{S}{4 I_0} \frac{dI}{I_0}$$

$S \simeq 1,9 \cdot I_0 \cdot \Delta\sigma$  = surface de la courbe de Gauss.

Pour  $\frac{dI}{I_0} = 0,02$ ,  $\delta$  est inférieur à 0,02 mk.

Ces hypothèses extrêmes montrent que l'erreur finale reste acceptable. Les variations reproductibles d'intensité se faisant sur les deux faisceaux de mesure, leur influence sur la détermination des écarts isotopiques se trouve réduite.

### III - D - Erreurs dues à l'emploi de sources séparées

Les erreurs dues à l'emploi de sources séparées sont essentiellement celles causées par une différence de pression entre les deux tubes à décharge, en particulier lorsque la décharge contient un mélange de gaz. Avec notre méthode, nous avons la possibilité d'étudier de pair la déformation des profils et les déplacements en fonction de la pression. De plus nous avons la possibilité de travailler en émission induite ou en absorption : ainsi les transitions amplificatrices dans un mélange de gaz, (Xe - He par exemple) peuvent être absorbantes lorsque le gaz étudié est seul dans la décharge. Ce cas se présente pour les transitions  $5p^5 7p \rightarrow 5p^5 7s$  du xénon dont la fréquence (cf. chapitre II) est très sensible à la pression d'hélium : nous avons mesuré l'écart  $\delta\sigma(134, 132)$ , en absorption, à une température de 90° K, avec une pression de xénon de l'ordre de 0,2 torr. La précision atteinte est de l'ordre de 0,05 mk.

Comme dans la méthode précédente, nous avons pris pour précision des mesures, l'erreur quadratique moyenne commise sur plusieurs enregistrements effectués dans des conditions différentes de pression et de courant.

#### IV - RESULTATS.

Tous nos résultats concernent le xénon pour lequel nous avons disposé à la fois de mélanges isotopiques et d'isotopes purs ou très enrichis.

Nous avons mesuré les écarts isotopiques  $\delta\sigma(134, 132)$  pour cinq transitions infrarouges : ainsi que le montre le tableau ci-dessous, les résultats sont en bon accord avec les mesures faites à l'aide de la méthode précédemment décrite.

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | $\delta\sigma(134, 132)$ (mk)<br>Méthode d'excitation<br>alternée des isotopes | $\delta\sigma(134, 132)$ (mk)<br>Méthode d'amplification<br>ou d'absorption |
|------------------------|--------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------|
| 3, 36                  | 1, 36 $\pm$ 0, 03                                                              | 1, 35 $\pm$ 0, 03                                                           |
| 3, 50                  | 1, 38 $\pm$ 0, 03                                                              | 1, 43 $\pm$ 0, 03                                                           |
| 3, 99                  | 1, 47 <sub>5</sub> $\pm$ 0, 02 <sub>5</sub>                                    | 1, 48 <sub>5</sub> $\pm$ 0, 04                                              |
| 3, 43                  | 0 $\pm$ 0, 05                                                                  | 0 $\pm$ 0, 05 *                                                             |
| 3, 50                  | - 0, 54 $\pm$ 0, 05                                                            | - 0, 52 $\pm$ 0, 05 *                                                       |

La précision atteinte avec cette méthode est comparable à celle obtenue avec la précédente; on peut vraisemblablement la rendre supérieure en améliorant les méthodes de dépouillement et de contrôle. La figure 26 montre un enregistrement de la raie à 3,65  $\mu$ , en absorption, la décharge étant refroidie à une température voisine de celle de l'oxygène liquide.

\* Mesures faites en absorption, en xénon pur.

$^{134}\text{Xe}$  et  $^{132}\text{Xe}$

$\lambda = 3,6518\mu$  (  $7p [1/2]_1 \rightarrow 7s [3/2]_2$  )  
 $\delta\sigma = -(0,50 \pm 0,05)\text{mK}$   $\Delta\sigma = 12,5\text{mK}$

ABSORPTION  
 $T = 90^\circ\text{K}$

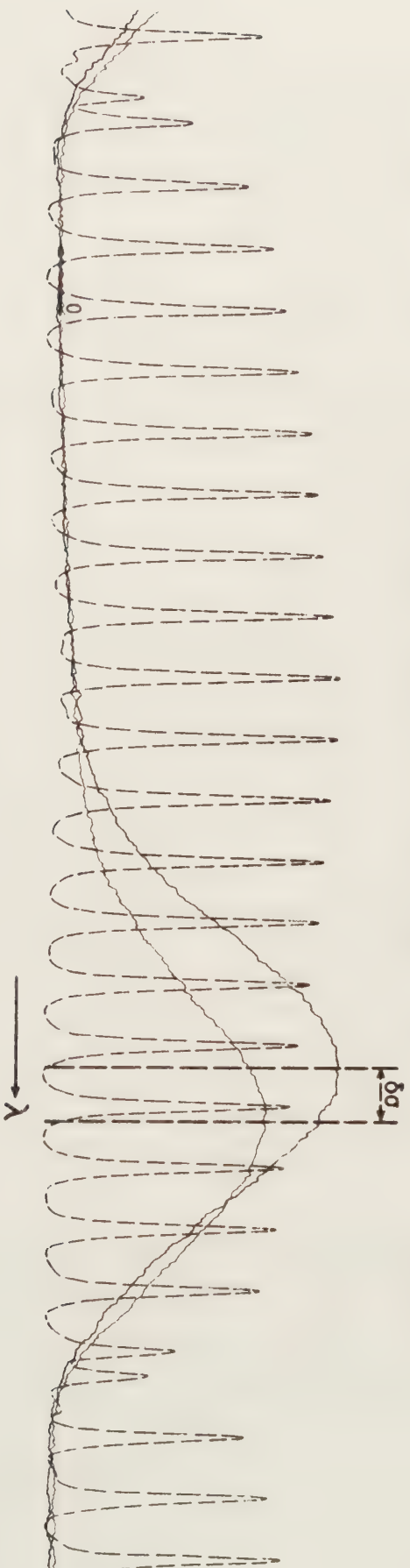
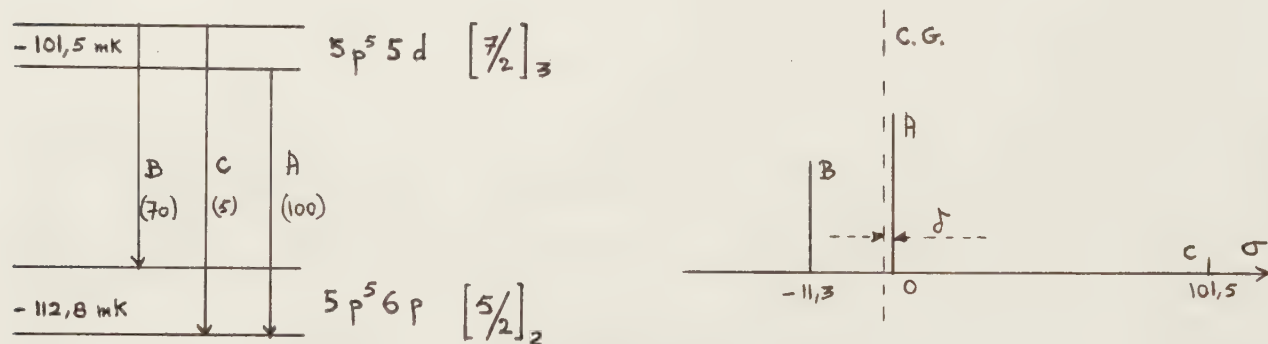


Fig. 26

Nous avons d'autre part mesuré l'écart entre l'isotope 132 et une composante de structure hyperfine due à l'isotope 129 du xénon, pour la transition à  $3,50 \mu$ . La structure de la raie est indiquée dans la figure ci-dessous (10) (83).



Le calcul montre que le centre de gravité de la raie se trouve à une distance  $\delta = -1,60 \text{ mk}$  de la composante la plus intense A. Etant donnée la précision des mesures concernant l'écart hyperfin des niveaux de la transition,  $\delta$  est défini à  $0,1 \text{ mk}$  près. La mesure de l'écart entre la composante A

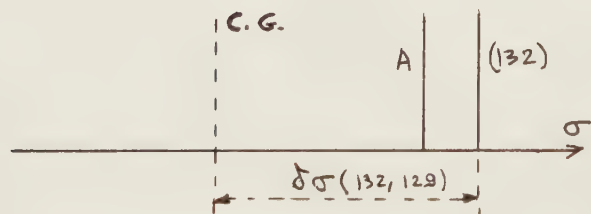
et la composante due à l'isotope 132 permet donc d'obtenir l'écart isotopique  $\delta\sigma(132, 129)$  dans des conditions acceptables. Nous avons ainsi obtenu :

$$\delta\sigma(132, A) = (0,15 \pm 0,05) \text{ mk}$$

d'où  $\delta\sigma(132, 129) = (1,75 \pm 0,15) \text{ mk}$

Pour la transition à  $3,50 \mu$ , l'isotope 129 est ainsi placé entre les isotopes 130 et 128.

La composante B qui permettrait un contrôle supplémentaire n'est pas accessible à la mesure. Pour la plupart des raies, l'écart entre la composante la plus intense et le centre de gravité est trop grand pour que nous puissions entreprendre une étude systématique des écarts pairs-impairs.



## V - EFFETS DE DISPERSION DANS UN LASER A GAZ.

Dans un laser monomode dont la cavité a une longueur variable, la fréquence  $\nu$  de l'oscillation ne correspond pas rigoureusement à la fréquence de résonance  $\nu_c$  de la cavité. Soit  $\Delta$  la différence de marche dans la cavité inactive :  $\nu_c$  est défini par  $\Delta = \frac{k\nu_c}{c}$  si  $k$  est un nombre entier. Lorsque la cavité contient un milieu actif, l'oscillation se produit à la fréquence  $\nu$  et l'écart  $(\nu - \nu_c)$  varie au cours du balayage de la cavité suivant une fonction des paramètres de la transition laser et des caractéristiques de la cavité : Ce phénomène provient de la variation de l'indice de réfraction du milieu amplificateur avec la fréquence (dispersion anormale), il est compliqué par des effets non linéaires propres à l'effet laser ("Hole burning"). Nous allons examiner l'aspect classique puis l'aspect quantique de ce phénomène; nous verrons par la suite comment il se présente dans notre expérience.

### V - A - Aspect classique

Nous allons suivre l'exposé qui a été fait par W. R. BENNETT en 1962 (52). L'oscillation laser doit satisfaire à deux conditions :

- Condition d'amplitude. Soit  $g(\nu - \nu_0)$  le gain "non saturé" de la transition, lié simplement au profil spectral de la raie considérée  $J(\nu - \nu_0)$  (il lui est proportionnel lorsqu'il n'est pas trop élevé). L'oscillation se produit pour une valeur du gain égale ou supérieure aux pertes  $f$  de la cavité (pertes par réflexion sur les miroirs, par diffraction, par diffusion...): on écrit, pour un aller simple de l'onde lumineuse dans le laser :

$$g(\nu - \nu_0) = f.$$

En présence d'oscillations, il se produit un phénomène de saturation qui limite le gain en amplitude.

- Condition de phase. Le retard de phase total  $\varphi$  introduit lors d'un aller simple du faisceau dans la cavité contenant le milieu amplificateur, d'indice  $n$  variable, doit être un multiple entier de  $2\pi$  :

$$\varphi = 2\pi L n \nu / c = k 2\pi.$$

La condition d'amplitude et la condition de phase définissent la fréquence de l'oscillation par rapport à la fréquence de résonance  $\nu_c$  de la cavité.

Pour une cavité vide,  $n = 1$ , les fréquences de résonance sont espacées de la quantité  $c/2L$  et la dispersion est constante :  $\partial\varphi/\partial\nu_c = 2\pi L/c$ . On a l'habitude de définir un facteur de qualité :  $Q = \nu_c/\delta\nu_c$  où  $\delta\nu_c$  est la largeur de la courbe de résonance, ici la fonction d'Airy. On peut monter la relation suivante si les pertes  $f$  sont suffisamment faibles :  $Q = 2\pi L \frac{\nu_c}{c} \frac{1}{f}$ .

Quand on met un milieu actif, l'indice  $n$  du milieu varie avec la fréquence et la dispersion n'est plus constante; soit  $\Delta\phi(\nu - \nu_o)$  le changement de phase dû à la présence du milieu lors d'un aller simple : la condition de phase s'écrit :

$$(\nu - \nu_c) \frac{\partial\varphi}{\partial\nu} + \Delta\phi(\nu - \nu_o) = 0 \quad (1)$$

$$\text{avec } \Delta\phi(\nu - \nu_o) = \frac{2\pi L \nu}{c} (n_o - 1) + \Delta\psi(\nu - \nu_o) \quad (2)$$

Le premier terme est un changement de phase provoqué par les atomes à l'état fondamental et par les atomes qui participent à des transitions différentes de la transition considérée. Ici  $n_o$  est très peu différent de 1, et indépendant de  $\nu$ . (pour l'hélium-néon,  $n_o - 1 \approx 5 \cdot 10^{-8}$ , à une pression totale de l'ordre de 1 torr).

Le deuxième terme  $\Delta\psi(\nu - \nu_o)$  est fonction du gain de la transition. Pour une raie symétrique,  $\Delta\psi(\nu - \nu_o)$  passe par 0 pour la fréquence centrale  $\nu_o$  de la transition;  $\Delta\psi(\nu - \nu_o)$  est négatif pour  $\nu < \nu_o$  et positif pour  $\nu > \nu_o$ . En conséquence, par rapport à  $\nu_c$ ,  $\nu$  est toujours décalée vers le centre de la raie.

On calcule  $\nu$  à partir des relations (1) et (2) :

$$\nu = \frac{\nu_c}{n_o} - \Delta\psi(\nu - \nu_o) \frac{\delta\nu_c}{n_o} \frac{1}{f} \simeq \nu_c - \Delta\psi(\nu - \nu_o) \frac{\delta\nu_c}{f}$$

Le calcul de  $\bar{\nu}$  se ramène au calcul de  $\Delta \Psi(\bar{\nu} - \nu_o)$  : pour cela il faut faire des hypothèses sur le profil  $J(\bar{\nu} - \nu_o)$ .

- Pour une raie dont le profil est une courbe de Lorentz (élargissement "homogène"), le gain est donné par la relation suivante :

$$g(\bar{\nu} - \nu_o) \simeq g_o \left( 1 + \frac{4(\bar{\nu} - \nu_o)^2}{\Delta \nu_N^2} \right)^{-1}$$

où  $g_o$  est le gain "non saturé" au centre de la transition,  $\Delta \nu_N$  la largeur à mi-hauteur.

$$\Delta \Psi(\bar{\nu} - \nu_o) = g(\bar{\nu} - \nu_o) \frac{(\bar{\nu} - \nu_o)}{\Delta \nu_N}$$

A partir de ces deux relations, on peut calculer la fréquence de l'oscillation :

$$\bar{\nu} = \frac{\nu_c \Delta \nu_N + \nu_o \delta \nu_c}{\Delta \nu_N + \delta \nu_c}$$

$$\text{et pour } \delta \nu_c \ll \Delta \nu_N, \bar{\nu} \simeq \nu_c + (\nu_o - \nu_c) \frac{\delta \nu_c}{\Delta \nu_N} \left( 1 - \frac{\delta \nu_c}{\Delta \nu_N} + \dots \right)$$

Dans ces conditions l'écart de fréquence  $(\bar{\nu} - \nu_c)$  dépend linéairement de l'écart  $(\nu_o - \nu_c)$ .

- Pour une raie dont le profil est une courbe de Gauss (élargissement par effet Doppler) on peut montrer :

$$g(\bar{\nu} - \nu_o) \simeq g_o \exp - \frac{(\bar{\nu} - \nu_o)^2}{(0,6 \Delta \nu_D)^2} \quad \Delta \nu_D : \text{largeur Doppler.}$$

$$\Delta \Psi(\bar{\nu} - \nu_o) \simeq + 0,28 g(\bar{\nu} - \nu_o) \exp - \frac{(\bar{\nu} - \nu_o)^2}{(0,6 \Delta \nu_D)^2} \sin \frac{\bar{\nu} - \nu_o}{0,3 \Delta \nu_D}$$

La fréquence de l'oscillation est donnée par la relation :

$$\bar{\nu} \simeq \nu_c - 0,28 \delta \nu_c \exp - \frac{(\bar{\nu} - \nu_o)^2}{(0,6 \Delta \nu_D)^2} \sin \frac{\bar{\nu} - \nu_o}{0,3 \Delta \nu_D}$$

Ces relations sont valables pour  $\delta \nu_c \ll \Delta \nu_D$  et tant que l'on ne s'écarte pas trop du centre du profil spectral. L'écart de fréquence  $(\nu - \nu_c)$  n'est plus linéaire au cours du balayage.

D'une façon plus générale, quand le profil spectral  $J(\nu - \nu_o)$  est la convolution d'une courbe de Lorentz par une courbe de Gauss, on peut écrire :

$$g(\nu - \nu_o) = -g_o \frac{Z_i(\nu - \nu_o)}{Z_i(o)}$$

$$\Delta \varphi(\nu - \nu_o) = \frac{g_o}{2} \frac{Z_r(\nu - \nu_o)}{Z_i(o)}$$

$Z_r$  et  $Z_i$  sont la partie réelle et la partie imaginaire de  $Z(\nu - \nu_o)$  fonction de dispersion du milieu actif :

$$Z(\nu - \nu_o) = -Z_i \int_{-\infty}^{i\infty} \exp - (t^2 + \frac{\nu - \nu_o}{\Delta \nu_D} t) dt \text{ avec :}$$

$$\frac{\nu - \nu_o}{\Delta \nu_D} = - \frac{2(\nu - \nu_o)}{\Delta \nu_D} \sqrt{\text{Log } 2} + i \frac{\Delta \nu_N \sqrt{\text{Log } 2}}{\Delta \nu_D}$$

La connaissance de  $z(\nu - \nu_o)$  devrait permettre l'évaluation de  $\Delta \varphi(\nu - \nu_o)$  dans le cas le plus général. Il faut cependant tenir compte du phénomène de "Hole burning" pour connaître le déphasage total en présence d'oscillations : dans la courbe de gain de la transition, deux "trous" sont "brûlés" par les atomes qui participent à l'émission laser. Ils sont placés symétriquement par rapport à  $\nu_o$ , l'un est le trou "oscillant" et l'autre le trou "image". La condition d'amplitude  $g(\nu - \nu_o) = f$  est satisfaite pour les deux trous (fig. 27) mais le gain sur la partie du profil non intéressée par l'oscillation n'est pas saturé : le changement de phase total  $\Delta \varphi_T(\nu - \nu_o)$  est ainsi la différence entre le changement de phase introduit par tous les atomes en l'absence d'oscillation,  $\Delta \varphi(\nu - \nu_o)$  et le changement de phase introduit par les atomes dans les trous,  $\Delta \varphi'(\nu - \nu_o)$ .

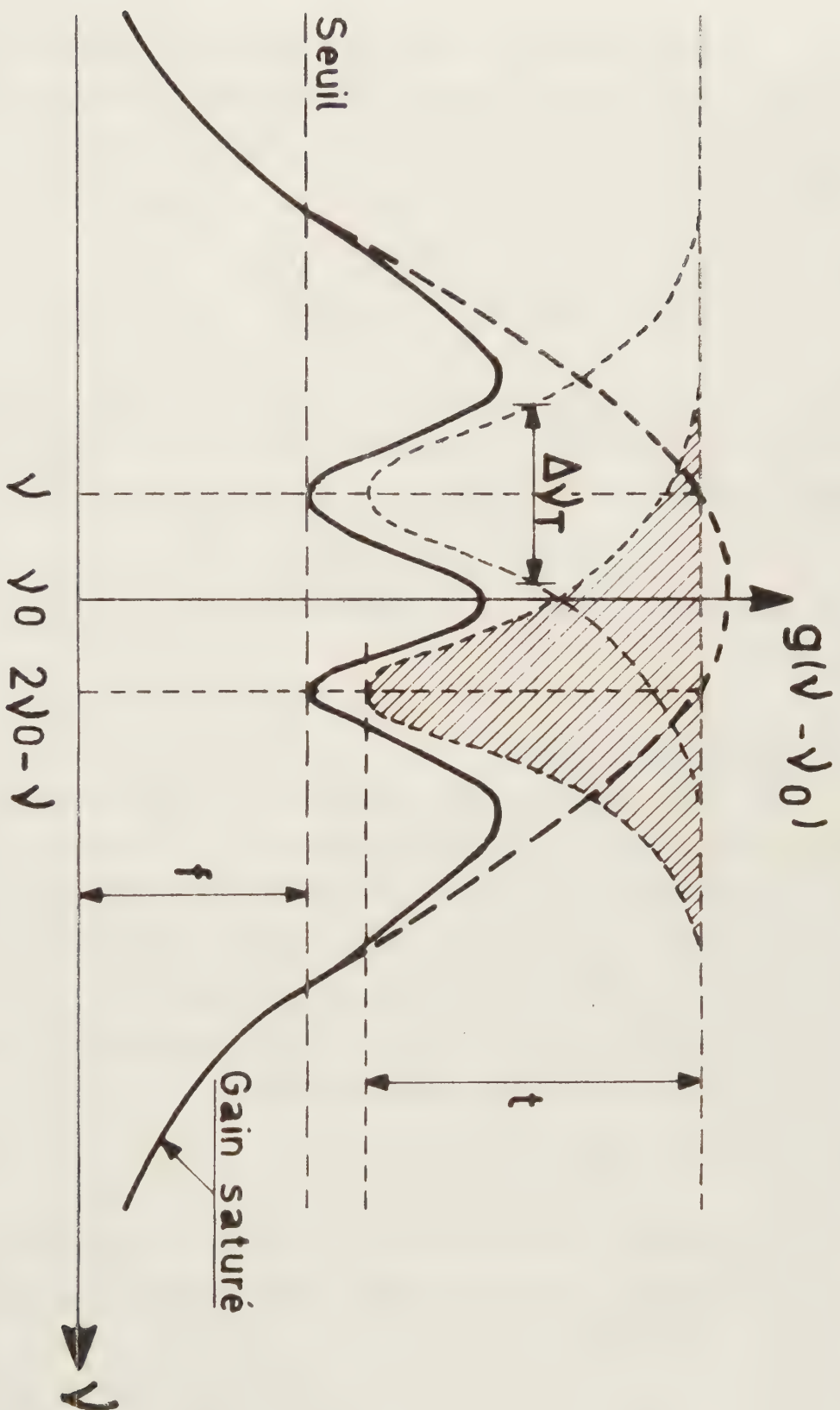


Fig. 27

Pour calculer  $\Delta \nu'(\nu - \nu_0)$ , on procède par analogie avec le cas lorentzien vu plus haut (la forme des trous est déterminée par des processus d'élargissement naturel) : soit  $\Delta \nu_\tau$  la largeur à mi-hauteur de la courbe de Lorentz. Le calcul montre :

$$\Delta \nu'(\nu - \nu_0) = \frac{-(g(\nu - \nu_0) - f) \Delta \nu_\tau^2}{\Delta \nu_\tau^2 + 8(\nu - \nu_0)^2} \frac{\nu - \nu_0}{\Delta \nu_\tau}$$

$\Delta \nu_\tau(\nu - \nu_0)$  est ainsi la résultante d'un terme qui tend à ramener l'oscillation vers le centre de la raie et d'un terme qui tend à l'en éloigner. Les rapports  $\frac{\text{largeur Doppler}}{\text{largeur naturelle}}$  et  $\frac{g(\nu - \nu_0)}{f}$  déterminent le signe de l'effet total.

Ces phénomènes ont été vérifiés expérimentalement par C. S. LIU, B. E. CHERRINGTON et J. T. VERDEYEN sur la transition à  $3,39 \mu$  du néon (53).

#### V - B - Aspect quantique

Dans sa théorie semi-quantique, LAMB considère l'action du champ électromagnétique qui règne dans la cavité sur les atomes du milieu (32). Le champ créé une polarisation macroscopique du milieu qui agit à son tour en créant un champ électrique "induit". La condition de "seff-consistance" permet de calculer le champ total, en présence d'oscillations.

Soient  $E(z, t)$  et  $P(z, t)$  le champ électrique et la polarisation dans la cavité. On peut poser d'une façon générale :

$$E(z, t) = \sum_n A_n(t) \sin k_n z.$$

où  $n$  est un nombre entier définissant l'ordre d'un mode de vibration;  $k_n = \frac{n\pi}{L}$ . Les  $A_n(t)$  obéissent à l'équation différentielle suivante, caractéristique d'un oscillateur harmonique amorti :

$$\frac{d^2 A_n}{dt^2} + \frac{\gamma}{\epsilon_0} \frac{d A_n}{dt} + \nu_c^2 A_n = - \frac{1}{\epsilon_0} \frac{d^2 P_n(t)}{dt^2}$$

$$\text{où } P_n(t) = \frac{2}{L} \int_0^L P(z, t) \sin k_n z \, dz.$$

$\gamma$  est une conductivité apparente du milieu, ajustée de façon que la relation suivante soit vérifiée :  $\gamma = 2\pi \epsilon_0 \cdot \nu / Q_n$  où  $Q_n$  est le facteur de qualité de la cavité, pour le mode d'ordre  $n$ . En supposant l'onde monochromatique, l'équation différentielle précédente se réduit à :

$$\frac{d^2 A_n}{dt^2} + \frac{2\pi \nu}{Q_n} \frac{d A_n}{dt} + 4\pi^2 \nu_c^2 A_n = \frac{4\pi^2 \nu^2}{\epsilon_0} P_n$$

Ici  $\nu$  est la fréquence de l'oscillation. En écrivant :

$$A_n(t) = E_n(t) \cos(2\pi \nu t + \varphi(t))$$

$$P_n(t) = C_n(t) \cos(2\pi \nu t + \varphi(t)) + S_n(t) \sin(2\pi \nu t + \varphi(t))$$

on arrive aux équations de "seff-consistance" :

$$(2\pi \nu + \frac{d\varphi}{dt} - 2\pi \nu_c) E_n = \frac{\nu}{2} \frac{2\pi}{\epsilon_0} C_n$$

$$\frac{d E_n}{dt} + \frac{\nu}{2} \frac{2\pi}{Q_n} E_n = - \frac{\nu}{2} \frac{2\pi}{\epsilon_0} S_n.$$

Restent à déterminer maintenant  $C_n$  et  $S_n$  en fonction de  $E_n$ . Lamb a fait le calcul en utilisant la matrice-densité et en considérant une transition laser de largeur naturelle  $\gamma_{ab}$  élargie par effet Doppler. La polarisation  $P_n(t)$  est calculée par la méthode des perturbations.

Au premier ordre, Lamb a calculé :

$$S_n^{(1)} = - \frac{\omega^2}{\hbar K_u} \overline{N} 2\pi Z_i (\nu - \nu_c) E_n$$

$$C_n^{(1)} = - \frac{\omega^2}{\hbar K_u} \overline{N} 2\pi Z_r (\nu - \nu_c) E_n$$

avec  $\omega$  : élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique, entre les deux états correspondant aux deux niveaux de la transition.

$\overline{N}$  : excitation moyenne du milieu, liée à la densité des atomes actifs en l'absence d'oscillation.

$K_u$  : paramètre de la transition, proportionnel à la largeur Doppler  $= 0,6 \Delta \nu_D$ .

On en déduit pour un laser monomode :

$$(\nu - \nu_c) = \frac{\nu}{2} \frac{1}{Q_n} \frac{Z_r(\nu - \nu_o)}{Z_i(\nu - \nu_o)}$$

et en supposant  $\gamma_{ab} \ll K_u$  :

$$(\nu - \nu_c) = -(\nu - \nu_o) \frac{\nu}{\mathcal{H}^{1/2} Q_n K_u}$$

cette relation implique un décalage linéaire entre  $\nu$  et  $\nu_c$  par rapport à  $(\nu - \nu_o)$ .

Au troisième ordre, Lamb a calculé  $S_n^{(3)}$  et  $C_n^{(3)}$  et montré que l'on pouvait écrire l'écart  $(\nu - \nu_c)$ , pour un laser monomode, sous la forme :

$$(\nu - \nu_c) = \alpha + \beta E^2$$

où  $\alpha$  est le terme de décalage linéaire calculé au premier ordre de la perturbation et  $\beta E^2$  un terme complexe qui dépend de l'excitation relative  $\mathcal{H}$

( $\mathcal{H} = \frac{N}{N_s}$ ,  $N_s$  excitation au seuil de l'effet laser), de l'intensité de l'oscillation et d'une fonction de Lorentz centrée en  $\nu_o$ .  $\alpha$  éloigne la fréquence d'oscillation de  $\nu_c$  et  $\beta E^2$  éloigne la fréquence d'oscillation de la fréquence  $\nu_o$ . R. A. MAC FARLANE a montré que la théorie classique et la théorie quantique conduisent, moyennant certaines approximations, à des résultats comparables (54).

#### V - C - Conséquences pour notre méthode d'analyse

L'écart  $(\nu - \nu_c)$  est donc une fonction compliquée des divers paramètres de l'oscillation et des caractéristiques de la cavité : il est impossible de le prévoir théoriquement et des mesures préliminaires des caractéristiques de

l'oscillation pour chaque raie ne peuvent conduire qu'à un ordre de grandeur. Dans une expérience où le laser est utilisé comme source de lumière dont il importe de connaître la fréquence avec précision, il est préférable de faire un contrôle direct de celle-ci. Le procédé le plus simple nous a semblé être l'utilisation d'un étalon Fabry-Perot de grande épaisseur; la précision obtenue est suffisante pour contrôler efficacement la fréquence de l'onde incidente.

Quand l'intensité est asservie, le terme  $E^2$  est constant dans l'expression donnée par Lamb; le terme  $\beta$  est par contre toujours variable. On conçoit donc que l'asservissement introduise une certaine "linéarisation" du phénomène. De plus, dans les conditions de travail du laser monochromateur, la pression d'hélium est en général de l'ordre de plusieurs torr ce qui entraîne un élargissement par collisions : le profil spectral se rapproche alors d'une courbe de Lorentz pour laquelle nous avons vu que  $(\nu - \nu_c)$  varie linéairement avec  $(\nu_o - \nu_c)$ . Le phénomène est compliqué par la présence de plusieurs isotopes dans la source.

Lors de chaque mesure de  $I_o$ , nous avons constaté que  $(\nu - \nu_c)$  varie linéairement, dans la partie asservie de la plage de balayage (les franges de Fabry-Perot sont équidistantes, à la précision des mesures). Nous avons également vérifié que plus les pertes étaient élevées, plus l'écart était important : dans certaines conditions d'oscillation, le rapport  $\frac{\nu - \nu_c}{\nu_c - \nu_o}$  a atteint la valeur 1,4, pour la transition à  $3,50 \mu$ . Un tel écart, si on n'en tenait pas compte, introduirait bien entendu une erreur considérable dans la mesure des écart isotopiques ou l'analyse des profils.



#### CHAPITRE IV - ETUDE DU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE.

L'effet isotopique résulte de la superposition de l'effet de masse et de l'effet de volume. Pour les éléments moyens et lourds, on considérait jusqu'à ces dernières années que le déplacement isotopique était constant dans les différents niveaux d'une configuration électronique pure et que le déplacement isotopique relatif était également constant dans toutes les transitions. Avec l'amélioration des techniques de mesure il est apparu que la dernière hypothèse devait être abandonnée (55) et à l'heure actuelle, l'effet spécifique de masse n'est plus considéré comme un effet de moindre importance, dont la valeur serait constante dans les configurations.

L'effet de volume rendant compte de certaines propriétés du noyau a fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales, en particulier pour les éléments dont le nombre de nucléons est voisin des nombres magiques. Autour de 82, l'étude est fort avancée pour le césium, le baryum, le cérium, le néodyme et le samarium : elle ne l'est pas pour le xénon. Il y a plusieurs raisons à cet état de choses :

- Les écarts isotopiques à mesurer sont toujours très petits,
- les isotopes stables du xénon sont nombreux et leur séparation est difficile.

L'étude du déplacement isotopique dans le xénon a été entreprise au laboratoire Aimé-Cotton, pour compléter les mesures faites autour de  $N = 82$  (56) (57) (58) : les raies visibles sont actuellement étudiées par D. A. JACKSON et M. COULOMBE par une méthode photographique utilisant un étalon Fabry-Perot (59) tandis que les raies laser infrarouges sont l'objet de la présente étude. Pour ces dernières, la précision des mesures permet effectivement de mettre en évidence la variation du déplacement isotopique relatif et montre l'importance de l'effet spécifique de masse. Avant d'exposer les résultats que nous avons obtenus, il est nécessaire de rappeler brièvement les divers aspects théoriques du déplacement isotopique : dans tout ce qui suit nous considérerons que la théorie s'applique à des isotopes pairs ou aux centres de gravité des structures hyperfines des isotopes impairs.

# I - EFFET DE MASSE DANS LES NIVEAUX D'UNE CONFIGURATION ELECTRONIQUE.

L'effet de masse tire son origine du fait que le noyau n'est pas rigoureusement le centre de masse de l'atome et qu'il est entraîné par les électrons. Soit  $H_0$  l'hamiltonien décrivant un atome de masse infinie et  $H$  l'hamiltonien décrivant un atome réel de masse  $M$  ;  $H$  contient un terme supplémentaire d'énergie cinétique :

$$H = H_0 + \frac{1}{2M} \left( \sum_i \vec{P}_i \right)^2$$

$\vec{P}_i$  désigne la quantité de mouvement d'un électron  $i$  par rapport au noyau ; l'hamiltonien perturbateur se décompose en deux termes :

$$\frac{1}{2M} \sum_i (\vec{P}_i)^2 \quad \text{et} \quad \frac{1}{M} \sum_{j>i} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j$$

Au premier terme correspond un déplacement "normal" ou effet de Bohr, et au deuxième correspond un déplacement "spécifique".

## I - A - Effet de Bohr

Il se calcule aisément en remplaçant dans l'expression de l'énergie  $E_0$  d'un niveau, la masse  $m$  de l'électron par sa masse réduite  $\mu = \frac{m M}{m + M}$  ; l'écart d'énergie dû à l'effet de Bohr s'écrit alors :

$$\Delta E_B = E - E_0 = E_0 \left( \frac{M}{m + M} - 1 \right) \simeq - E_0 \frac{m}{M}$$

Pour deux isotopes  $M_1$  et  $M_2$  d'un élément donné, ( $M_2 > M_1$ ), la différence d'énergie entre les niveaux s'écrit :

$$\delta_{T_B}(M_2, M_1) = - E_0 m \frac{M_1 - M_2}{M_1 \cdot M_2} .$$

## I - B - Effet spécifique

Il est beaucoup plus difficile à calculer car il correspond aux termes rectangles de l'équation de Schrödinger; pour les calculer il faut utiliser les fonctions d'onde radiales  $R(n, l)$  de l'atome. Pour certains éléments légers, la méthode de Hartree-Fock, non relativiste, permet d'obtenir les fonctions d'onde et le calcul de l'effet spécifique est bon. Pour les éléments moyens et lourds, il faut tenir compte des effets relativistes et, à quelques exceptions près, le calcul de l'effet spécifique ne permet d'obtenir qu'un ordre de grandeur. On peut dégager quelques lois générales des travaux de D. S. HUGHES et C. ECKART (60), de A. P. STONE (61), J. P. VINTI (62) et de J. BAUCHE (63) :

- Tous les électrons de la configuration électronique étudiée apportent leur contribution à l'effet spécifique total.
- Dans un niveau, on peut toujours écrire l'effet spécifique correspondant aux isotopes de masse  $M_1$  et  $M_2$ , sous la forme :

$$\delta_{TS}(M_2, M_1) = \frac{M_1 - M_2}{M_1 \cdot M_2} K$$

$K$  est une fonction des seules propriétés électroniques de l'atome.

- Dans une configuration électronique à deux électrons optiques,  $K$  est nul ou très petit sauf pour les électrons dont les fonctions d'onde ont des valeurs de  $l$  différant de  $\pm 1$ .

- Suivant BAUCHE, l'effet spécifique est surtout important pour des sauts d'électrons du type :

$$n d \rightarrow (n + 1) p$$

$$n f \rightarrow (n + 1) d$$

Il est très faible pour des sauts du type :

$$n p \rightarrow n s$$

$$n s \rightarrow (n - 1) p.$$

L'effet spécifique varie relativement peu d'un terme à l'autre de la configuration. En définitive, l'effet spécifique se présente pour nous comme un effet gênant dont bien souvent, on ne peut prévoir ni la grandeur ni le signe.

## II - EFFET DE VOLUME DANS LES NIVEAUX D'UNE CONFIGURATION ELECTRONIQUE.

Nous n'allons considérer pour le moment que des configurations électroniques pures. L'effet de volume tire son origine du fait que le potentiel  $V(r_i)$ , à l'endroit du noyau, est différent d'un isotope à l'autre. Soit  $H_0$  l'hamiltonien décrivant un atome de masse infinie et de volume nul, et soit  $H$  l'hamiltonien décrivant un atome réel dont le noyau a un volume fini :

$$H = H_0 + \sum_i \left( \frac{Ze^2}{r_i} - e V(r_i) \right)$$

La somme est étendue à tous les électrons de la configuration mais dans la pratique seuls les électrons  $s$  sont à considérer. Soit  $r_0$  le "rayon" nucléaire :

$$V(r_i) \neq \frac{Ze}{r_i} \quad \text{pour} \quad r_i < r_0$$

$$V(r_i) \neq \frac{Ze}{r_i} \quad \text{pour} \quad r_i \gg r_0$$

A l'endroit du noyau, le potentiel  $V(r_i)$  dépend des dimensions de celui-ci : il en résulte un effet de volume qui a été évalué en 1932 par J. E. ROSENTHAL et G. BREIT (64), par G. RACAH (65). On trouvera des exposés relatifs à cette quantité dans l'ouvrage de KOPFERMANN (66), et les articles de BREIT (67) et de D. N. STACEY (68).

En supposant que la densité de charge nucléaire ait la symétrie sphérique et que la densité de probabilité de présence  $\rho_e(r)$  des électrons à

l'endroit du noyau soit également sphérique, on peut écrire l'écart d'énergie  $\Delta E_v$  qui résulte du fait que le potentiel n'est pas coulombien, sous la forme:

$$\Delta E_v = -e \int_0^{r_0} \rho_e(r) \left( \frac{Ze}{r_i} - V(r_i) \right) 4\pi r^2 dr$$

L'écart entre les niveaux relatifs à deux isotopes s'écrit :

$$\delta T_v(M_2, M_1) = -e \int_0^{r_0} \rho_e(r) \delta \left( \frac{Ze}{r_i} - V(r_i) \right) 4\pi r^2 dr.$$

$\rho_e(r)$  n'est différent de 0, au centre du noyau, que pour les électrons s et  $p_{1/2}$  et l'on néglige l'effet de volume des électrons  $p_{3/2}$ , d ou f devant celui des électrons s et  $p_{1/2}$ . Pour ces derniers, on doit tenir compte des effets relativistes pour apprécier correctement  $\delta T_v(M_2, M_1)$ : Le calcul a été fait par E. K. BROCH (69).

## II - A - Théorie de Broch

Elle utilise la théorie de Dirac : chaque fonction d'onde monoélectronique est caractérisée par deux fonctions radiales F et G satisfaisant aux équations de Darwin-Gordon. BROCH a montré que l'on peut écrire le déplacement isotopique total de volume d'un électron n l sous la forme :

$$\Delta E_v = \frac{N}{4\pi r^2(2\sigma)} \frac{Z\alpha - (k - \sigma) K(X_0)}{Z\alpha - (k + \sigma) K(X_0)} X_0^{2\sigma}$$

Z : numéro atomique de l'atome considéré.

$\alpha$  : constante de structure fine ,  $\alpha = 1/137$ .

k : nombre quantique de Dirac.

$$k = -(l + 1) \quad \text{pour } j = l + 1/2$$

$$k = -l \quad \text{pour } j = l - 1/2$$

$$\sigma = \sqrt{k^2 - \alpha^2 Z^2}$$

$$X = \frac{2 Z r}{a_H}$$

$r$  : distance du point considéré, au centre du système.

$a_H$  : rayon de la première orbite de Bohr, pour l'hydrogène.

$X_0$  correspond à un point extérieur au noyau mais cependant proche et  $K(X_0)$  donne le rapport en  $X_0$  de la petite composante à la grande composante de la fonction d'onde de Dirac :  $K = \frac{\hbar c}{Z e^2} \frac{F}{G}$

$N$  est une quantité purement électronique qui vaut :

$$4 \pi R_\infty \frac{a_H^3}{Z} |\psi(0)|^2 \quad \text{pour un électron } s$$

$$4 \pi R_\infty \frac{a_H^3}{Z} 21(21+1)(1+1) \langle r^{-3} \rangle \quad \text{pour un électron } p, d \text{ ou } f.$$

Pour un électron  $s$ ,  $|\psi(0)|^2$  peut être calculé par la méthode de Hartree-Fock ou par la relation de Fermi-Segré : c'est la densité de probabilité de présence au noyau d'un électron  $s$  :

$$|\psi(0)|^2 = \frac{Z \cdot Z a^2}{4 \pi a_H^3 n^{*3}} \left( 1 - \frac{d\Delta}{dn} \right)$$

$Z_a = 1$  pour l'atome neutre.

$n^*$  : nombre quantique effectif,  $\Delta$  : défaut quantique,

$n^*$  et  $\Delta$  peuvent être évalués à partir du spectre de l'élément quand le niveau peut être inclus dans une série ou bien à partir de l'écart hyperfin du niveau.

L'écart entre les niveaux relatifs à deux isotopes s'obtient par différentiation de la formule de Broch :

$$\delta_{T_v}(M_2, M_1) = \frac{N X_0^{2\sigma}}{2\Gamma^2(2\sigma)} \delta K(X_0) \frac{Z\alpha}{Z\alpha - (k + \sigma) K(X_0)^2}$$

Il faut maintenant calculer  $K(X_0)$  et  $\delta K(X_0)$  mais quelque soit le résultat du calcul, on peut montrer que  $\delta T_v(M_2, M_1)$  est le produit de deux facteurs, l'un purement nucléaire, l'autre purement électronique.

A. R. BODMER a calculé le rapport de l'effet de volume d'un électron  $n p_{1/2}$  à l'effet de volume d'un électron  $n s$  (70) :

$$\frac{\delta T_v n p_{1/2}}{\delta T_v n s} = \frac{1 - \sigma}{1 + \sigma}$$

Ce rapport est toujours faible. Pour le xénon  $\sigma = 0,92$ , le rapport vaut 0,04.

## II - B - Evaluation de $K(X_0)$ et $\delta K(X_0)$

Pour évaluer ces quantités, BODMER a introduit la notion de "noyaux équivalents" aux noyaux étudiés. Ce sont des noyaux sphériques, de rayon  $R_u$ , à distribution de charge uniforme; par définition, deux couples de noyaux sont équivalents s'ils ont même effet de volume. BODMER a montré que l'effet de volume d'un électron  $n s$  peut s'écrire sous la forme :

$$\delta T_v(M_2, M_1) = 4\pi R_u^3 \frac{a_H^3}{Z} \psi(0)^2 \frac{1}{2\pi^2(2\sigma)} \frac{Z\alpha + (1 + \sigma) K(R_u)}{Z\alpha + (1 - \sigma) K(R_u)} R_u^{2\sigma} \frac{\delta R_u}{R_u} \quad (1)$$

BODMER a montré que  $K(R_u)$  ne dépend pas de  $R_u$  : dans ces conditions,

$\delta T_v(M_2, M_1)$  est simplement proportionnel à  $R_u^{2\sigma} \frac{\delta R_u}{R_u}$  et donc à  $\delta(R_u^{2\sigma})$ .

Comme  $\sigma$  est de l'ordre de 1, on peut confondre  $\delta(R_u^{2\sigma})$  et  $\delta(R_u^2)$ .

Soit maintenant  $\langle r^2 \rangle$  le carré moyen du rayon de la charge nucléaire et  $\delta \langle r^2 \rangle$  sa variation d'un isotope à l'autre.  $R_u^2$  et  $\langle r^2 \rangle$  sont proportionnels et finalement  $\delta T_v(M_2, M_1)$  est proportionnel à  $\delta \langle r^2 \rangle$ . La mesure de l'effet de volume peut donc conduire à la mesure de la variation du carré moyen de la charge nucléaire entre deux isotopes.

Pour confronter théorie et expérience, nous devons maintenant faire des hypothèses sur la forme du noyau.

## II - C - Effet de volume et forme du noyau

L'hypothèse la plus simple consiste à considérer le noyau comme une sphère dont le volume est proportionnel à la masse  $M$ . Le rayon nucléaire suit la loi :

$$R_M = R_0 M^{1/3} \quad \text{avec} \quad R_0 = 1,20 \cdot 10^{-13} \text{ cm}.$$

Par définition,  $R_u$  est égal à  $R_M$ . A partir de la formule (1) donnée précédemment, on peut écrire  $\delta T_v(M_2, M_1)$  sous la forme :

$$\delta T_v(M_2, M_1) = C_{th} \cdot \frac{H a_H^3}{Z} |\psi(0)|^2$$

$C_{th}$  est la constante théorique du déplacement isotopique de volume, ne faisant intervenir que des quantités nucléaires. W. HUMBACH a calculé les valeurs de  $C_{th}$  en fonction de  $Z$  en utilisant la valeur  $R_0 = 1,40 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$  (71); ses valeurs de  $C_{th}$  sont donc trop élevées, dans le rapport  $(1,4/1,2)^2$ . Pour le xénon,  $C_{th} = 118 \times \left(\frac{1,2}{1,4}\right)^2 = 87$ . (le calcul est fait pour l'isotope 130).

Dans une deuxième étape, on est amené à considérer le noyau comme un ellipsoïde de révolution, uniformément chargé, dont le rayon vecteur est donné par la relation :

$$R(\theta) = a_0 \left( 1 + \frac{\alpha}{2} (3 \cos^2 \theta - 1) \right)$$

$\theta$  : angle polaire.

$\alpha$  est un coefficient lié à l'ellipticité du noyau, positif ou négatif; il est relié au "coefficient de déformation nucléaire"  $\beta$  par la relation :

$\alpha^2 = \beta^2 \frac{5}{4H}$ . Pour certains isotopes,  $\beta$  a été mesuré par spectrométrie nucléaire. Si l'on suppose que le volume total du noyau déformé est identique à celui qu'il aurait s'il n'était pas déformé et si  $\alpha$  est petit, on peut calculer le rayon du noyau équivalent et sa variation avec la masse :

$$R_u = R_M \left(1 + \frac{\alpha^2}{2}\right)$$

$$\delta(R_u^{2\sigma}) = 2\sigma R_M^{2\sigma} \left( \frac{\delta R_M}{R_M} + \frac{\delta(\alpha^2)}{2} \right).$$

L'effet de volume total est ainsi la somme de deux termes : l'effet de volume normal (ou pur) et l'effet de volume de déformation :

$$\delta T_v(M_2, M_1) = C_{th} \frac{\pi a_H^3}{Z} |\psi(0)|^2 \left( 1 + \frac{R_M}{\delta R_M} \frac{\delta(\alpha^2)}{2} \right).$$

Connaissant la valeur des coefficients de déformation nucléaire  $\beta$ , on peut calculer l'effet de déformation par rapport à l'effet de volume pur.

KOPFERMANN a évalué le rapport des deux effets (66) :

$$\frac{\delta T \text{ déf.}}{\delta T \text{ vol. pur}} = \frac{3}{10} (2\sigma + 3) M \left( \frac{\delta(\alpha^2)}{\delta R_M} \right)_Z.$$

Pour le xénon, l'effet de déformation prévu est faible, l'isotope 136 correspondant au nombre magique de neutrons  $N = 82$ , étant le moins déformé.

Dans une troisième étape, on est amené à considérer que le noyau est compressible; en particulier à l'intérieur d'une série d'isotopes, la variation du rayon nucléaire serait moins rapide que ne l'indique la loi

$R_M = R_0 M^{1/3}$ . Pour rendre compte de cet effet, E. E. FRADKIN a introduit deux coefficients  $\eta$  et  $\xi$  et écrit l'effet de volume total sous la forme (72) :

$$\delta T_v(M_2, M_1) = C_{th} \frac{\pi a_H^3}{Z} |\psi(0)|^2 \eta \left( 1 + \frac{R_M}{\delta R_M} \left( \frac{5}{4\pi} + \xi \right) \frac{\delta(\beta^2)}{2} \right)$$

$\eta$  et  $\xi$  sont ajustés empiriquement de façon à accorder théorie et expérience pour le plus grand nombre de spectres :  $\eta = 0,7$  et  $\xi = -\frac{5}{8\pi}$ . L'effet de ces deux coefficients est donc de réduire l'effet de volume pur et l'effet de déformation.

Des théories nucléaires plus raffinées (distribution de Elton) conduisent à adopter pour  $R_M$  une loi de variations plus compliquée :

$$R_M \simeq (1,115 M^{1/3} + 2,151 M^{-1/3} - 1,742 M^{-1}) 10^{-13} \text{ cm}.$$

Avec cette nouvelle définition de  $R_M$ , l'effet de volume total est encore réduit par un facteur 0,9 (73).

N. J. IONESCO-PALLAS a tenté d'unifier ces divers effets par l'utilisation de deux constantes  $C_{izo}^{standard}$  relative à un noyau sphérique et  $C_{izo}$  relative au noyau déformé (74).

En définitive, l'accord entre les prévisions théoriques et les résultats expérimentaux est loin d'être immédiat, d'autant que des effets d'écran et l'interaction de configurations viennent compliquer le problème.

## II - D - Effets d'écran

L'effet de volume total dans un niveau est la somme de l'effet de volume relatif à tous les électrons, électrons internes et électrons optiques; parmi ceux-ci, les électrons  $s$  sont responsables de la majeure partie de l'effet. En pratique, des configurations ayant les mêmes électrons  $s$  mais des électrons optiques  $n(l \neq 0)$  différents ont des écarts isotopiques différents : pour interpréter ce phénomène, on a été conduit à introduire la notion d'effet d'écran.

Les électrons optiques peuvent modifier la densité de probabilité de présence  $|\psi(o)_{ns}|^2$  des électrons  $s$  des couches complètes et des électrons  $s$  optiques : la contribution de ces électrons à l'effet isotopique total varie ainsi d'une configuration à l'autre. Dans une configuration du type  $\dots ns^2$ , les électrons  $s$  se font mutuellement écran et l'on a pu vérifier la relation suivante, en comparant l'effet de volume relatif à l'atome neutre, à l'atome 1 fois et 2 fois ionisé :

$$\frac{\delta T_v(nx(n+1)s^2) - \delta T_v(nx)}{\delta T_v(nx(n+1)s) - \delta T_v(nx)} = 1,60$$

Les facteurs d'écran associés à l'effet d'écran des électrons optiques ont des valeurs sensiblement identiques dans tous les spectres : leur valeur théorique peut être calculée à partir des variations de  $|\Psi(o)_{ns}|^2$  obtenues par la méthode de Hartree-Fock. J. BLAISE et A. STEUDEL (75) ont montré que les électrons f sont ceux qui ont le plus grand effet sur les électrons s des couches complètes.

## II - E - Interaction de configurations

Nous n'avons jusqu'à maintenant considéré que des configurations électroniques pures. Dans le cas où les configurations sont mélangées, les déplacements isotopiques des niveaux ne sont plus conservés mais dépendent de la pureté des niveaux. Soient deux niveaux A et B (de deux configurations différentes)  $\Psi_A$  et  $\Psi_B$  les fonctions d'onde qu'on peut leur attribuer et  $\delta T_A$  et  $\delta T_B$  leur déplacement isotopique total. Un niveau ayant pour fonction d'onde :

$$\Psi = \alpha \Psi_A + \beta \Psi_B \quad \text{a un déplacement isotopique :}$$

$$\delta T_v = \alpha^2 \delta T_A + \beta^2 \delta T_B .$$

Cette loi de partage semble assez bien vérifiée.

## III - EFFET ISOTOPIQUE TOTAL DANS UNE TRANSITION ENTRE DEUX NIVEAUX.

Soit  $\delta T_A$  l'effet isotopique total dans un niveau A et  $\delta T_B$  l'effet isotopique total dans un niveau B (B étant le plus profond).  $\delta T_A$  et  $\delta T_B$  résultent de la superposition de l'effet de masse et de l'effet de volume; pour ce dernier on peut ne tenir compte, en première approximation, que de l'effet des électrons s. La transition entre ces deux niveaux ne fait apparaître que la différence des effets et l'on peut ne tenir compte, toujours en première approximation, que de l'effet des électrons optiques des deux configurations. Soit  $\delta\sigma(M_2, M_1)$  l'écart isotopique mesuré dans la transition\* :

\* Il s'agit ici et pour toute la suite, de l'écart mesuré, effet de Bohr soustrait.

$$\delta\sigma(M_2, M_1) = \delta T_A - \delta T_B = K \cdot \frac{M_1 - M_2}{M_1 \cdot M_2} + F \cdot C_v(M_2, M_1) \quad (2)$$

$K \cdot \frac{M_1 - M_2}{M_1 \cdot M_2}$  représente la différence de l'effet spécifique des niveaux A et B.

$F \cdot C_v(M_2, M_1)$  représente la différence de l'effet de volume total des deux niveaux; F est une quantité purement électronique et  $C_v$  une quantité purement nucléaire qui ne dépend que du couple  $(M_2, M_1)$ .

Dans l'expression de  $\delta\sigma(M_2, M_1)$ , figure l'effet spécifique que l'on ne peut pas mesurer séparément et dont l'évaluation théorique est très incertaine pour les éléments moyens et lourds; on ne peut même pas être sûr de son signe. La comparaison théorie-expérience est donc particulièrement ardue. Dans le cas où l'on dispose de plusieurs isotopes, il est cependant intéressant de calculer pour chaque transition les quantités  $\rho$  et  $\Delta$  définies de la façon suivante :

Soient  $\delta\sigma(M_2, M_1)$  et  $\delta\sigma(M_3, M_2)$  les écarts relatifs aux isotopes de masse  $M_1$ ,  $M_2$  et  $M_3$  ( $M_3 - M_2 = M_2 - M_1 = 2$ ) ; le déplacement isotopique relatif est défini par :

$$\rho = \frac{\delta\sigma(M_2, M_1)}{\delta\sigma(M_3, M_2)} = \frac{\frac{-2K}{M_1 \cdot M_2} + F \cdot C_v(M_2, M_1)}{\frac{-2K}{M_2 \cdot M_3} + F \cdot C_v(M_3, M_2)}$$

L'accroissement d'écart relatif est défini par :

$$\Delta = \left( \delta\sigma(M_2, M_1) - \delta\sigma(M_3, M_2) \frac{M_3}{M_1} \right) = F \left( C_v(M_2, M_1) - C_v(M_3, M_2) \frac{M_3}{M_1} \right) \quad (3)$$

En l'absence d'effet spécifique,  $\rho$  devrait être constant dans toutes les transitions du spectre; sa valeur rendrait compte de la déformation du noyau ou de la variation irrégulière de son volume quand on passe du couple  $(M_2, M_1)$  au couple  $(M_3, M_2)$ .

En présence d'effet spécifique,  $\rho$  est généralement variable d'une transition à l'autre; il est constant et très peu différent de 1 dans le cas bien particulier où l'effet de volume total ne varie que très peu du couple  $(M_2, M_1)$  au couple  $(M_3, M_2)$ .

Dans l'expression de  $\Delta$ , l'effet spécifique et l'effet de volume pur sont éliminés : il ne reste que l'effet de volume dû à la déformation du noyau ou dû à la variation irrégulière de son volume.

A partir de la relation (2) indiquée précédemment, on peut trouver une relation linéaire entre l'effet spécifique d'une transition prise comme référence et l'effet spécifique des autres transitions étudiées, si l'on connaît les écarts relatifs à deux couples d'isotopes. Soient en effet les transitions (1) et (2) dont on connaît les écarts suivants :

$$\delta\sigma_1(M_2, M_1) = \frac{-2K}{M_1 \cdot M_2} + F \cdot C_v(M_2, M_1)$$

$$\delta\sigma_1(M_3, M_2) = \frac{-2K}{M_2 \cdot M_3} + F \cdot C_v(M_3, M_2)$$

$$\delta\sigma_2(M_2, M_1) = \frac{-2K'}{M_1 \cdot M_2} + F' \cdot C_v(M_2, M_1)$$

$$\delta\sigma_2(M_3, M_2) = \frac{-2K'}{M_2 \cdot M_3} + F' \cdot C_v(M_3, M_2)$$

En formant la quantité  $F/F'$ , on peut montrer que l'on a la relation suivante entre  $K$  et  $K'$  :

$$\begin{aligned} \frac{-2K'}{M_1 \cdot M_2} \left( \delta\sigma_1(M_3, M_2) - \delta\sigma_1(M_2, M_1) \frac{M_1}{M_3} \right) &= \frac{-2K}{M_1 \cdot M_2} \left( \delta\sigma_2(M_3, M_2) - \delta\sigma_1(M_2, M_1) \frac{M_1}{M_3} \right) \\ &+ \delta\sigma_2(M_2, M_1) \delta\sigma_1(M_3, M_2) - \delta\sigma_1(M_2, M_1) \delta\sigma_2(M_3, M_2) \end{aligned}$$

Cette relation peut s'écrire, en introduisant  $\Delta$  défini par (3)

$$-2K' \Delta_1 = -2K \Delta_2 + M_3 M_2 \left( \delta\sigma_1(M_2, M_1) \delta\sigma_2(M_3, M_2) - \delta\sigma_2(M_2, M_1) \delta\sigma_1(M_3, M_2) \right).$$

Nous avons donc une relation linéaire entre  $K$  et  $K'$  ; en portant  $K'$  en ordonnée et  $K$  en abscisse, cette relation se traduit par une droite qui représente l'effet spécifique de la transition (2) en fonction de l'effet spécifique de la transition (1). En traçant les droites relatives aux transitions (2), (3), (4)... en prenant toujours la transition (1) comme référence, on obtient un diagramme dit "diagramme de King"(76). Il n'apporte rien de fondamentalement nouveau mais permet de "visualiser" l'effet spécifique des diverses transitions les unes par rapport aux autres; la pente des droites donne le rapport de l'effet de volume des transitions (2), (3), (4)... à l'effet de volume de la transition (1).

#### IV - CORRELATION ENTRE L'EFFET DE VOLUME ET L'ENERGIE DE LIAISON PAR NUCLEONS.

Récemment S. GERSTENKORN a fait un rapprochement entre l'effet de volume d'un isotope et son énergie de liaison par nucléon (77). Il a ainsi constaté que, au voisinage des nombres magiques, la relation suivante est bien vérifiée :

$$\frac{\delta T_v(M_3, M_2)}{\delta T_v(M_2, M_1)} = \frac{E_3 - E_2}{E_2 - E_1} \quad \text{où } \delta T_v \text{ représente l'effet de volume total.}$$

$E_i$  représente l'énergie de liaison par nucléon d'un isotope  $i$ , mesurée par spectrométrie de masse (l'énergie de liaison totale est égale au défaut de masse). La corrélation est bien vérifiée pour le baryum, le strontium, le cérium, le chrome et le plomb; elle permet en particulier de rendre compte de la position inversée de certains isotopes les uns par rapport aux autres. En supposant qu'elle est vérifiée pour le xénon, nous pouvons en déduire l'effet de volume total des différentes transitions à partir de la valeur de  $\Delta$ .

## V - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DANS L'ARGON.

Pour cet élément, nous avons mesuré les écarts entre les isotopes 40 et 36 pour six transitions infrarouges, entre  $2\mu$  et  $6\mu$  : elles sont de trois types :



La figure 28 montre le schéma simplifié des niveaux correspondant aux transitions étudiées : seules des transitions infrarouges permettent pratiquement d'atteindre la configuration  $3p^5 3d$  ; les transitions du type  $3p^5 4p \longrightarrow 3p^5 4s$ ,  $3p^5 5p \longrightarrow 3p^5 4s$  sont par contre situées dans la partie visible ou proche infrarouge du spectre. Elles ont été étudiées par KOPFERMANN et KRÜGER en 1937 (78), par V. HORST MEYER en 1953 (79).

Le niveau fondamental est le niveau  $3p^6 \ ^1S_0$  ; les configurations excitées sont du type  $3p^5 ns$  ( $n \geq 4$ ),  $3p^5 nd$  ( $n \geq 3$ ) pour les configurations impaires et  $3p^5 np$  ( $n \geq 3$ ) et  $3p^5 nf$  ( $n \geq 4$ ) pour les configurations paires. Elles sont toutes groupées dans un petit intervalle d'énergie et très éloignées du niveau fondamental : il en résulte vraisemblablement un certain mélange des configurations. Dans une configuration du type  $3p^5 nl$ , on trouve deux groupes de niveaux, l'un bâti sur l'ion parent  $3p^5$  de  $j = 1/2$  (noté  $3p^5 nl'$ , en couplage  $j 1$ ) et l'autre bâti sur l'ion parent  $3p^5$  de  $j = 3/2$  (noté  $3p^5 nl$ ) (80).

Dans le cas de l'argon, on ne doit pas s'attendre à observer d'effet de volume important. Les écarts mesurés (effet de Bohr soustrait) sont indiqués dans le tableau IV : ils représentent principalement l'effet spécifique des transitions. Les mesures faites par les précédents auteurs montrent que l'on peut attribuer un effet spécifique nul aux niveaux de la configuration  $3p^5 5p$  ainsi qu'aux niveaux  $3p^5 4s \left[ \frac{3}{2} \right]_1$  et  $3p^5 4s \left[ \frac{3}{2} \right]_2$ . En conséquence, V. HORST MEYER a pris comme référence pour l'effet spécifique, l'ensemble des niveaux de la configuration  $3p^5 5p$ . Parmi les six transitions que nous avons étudiées, quatre font intervenir des niveaux de cette même configuration : il semble donc logique de prendre également comme

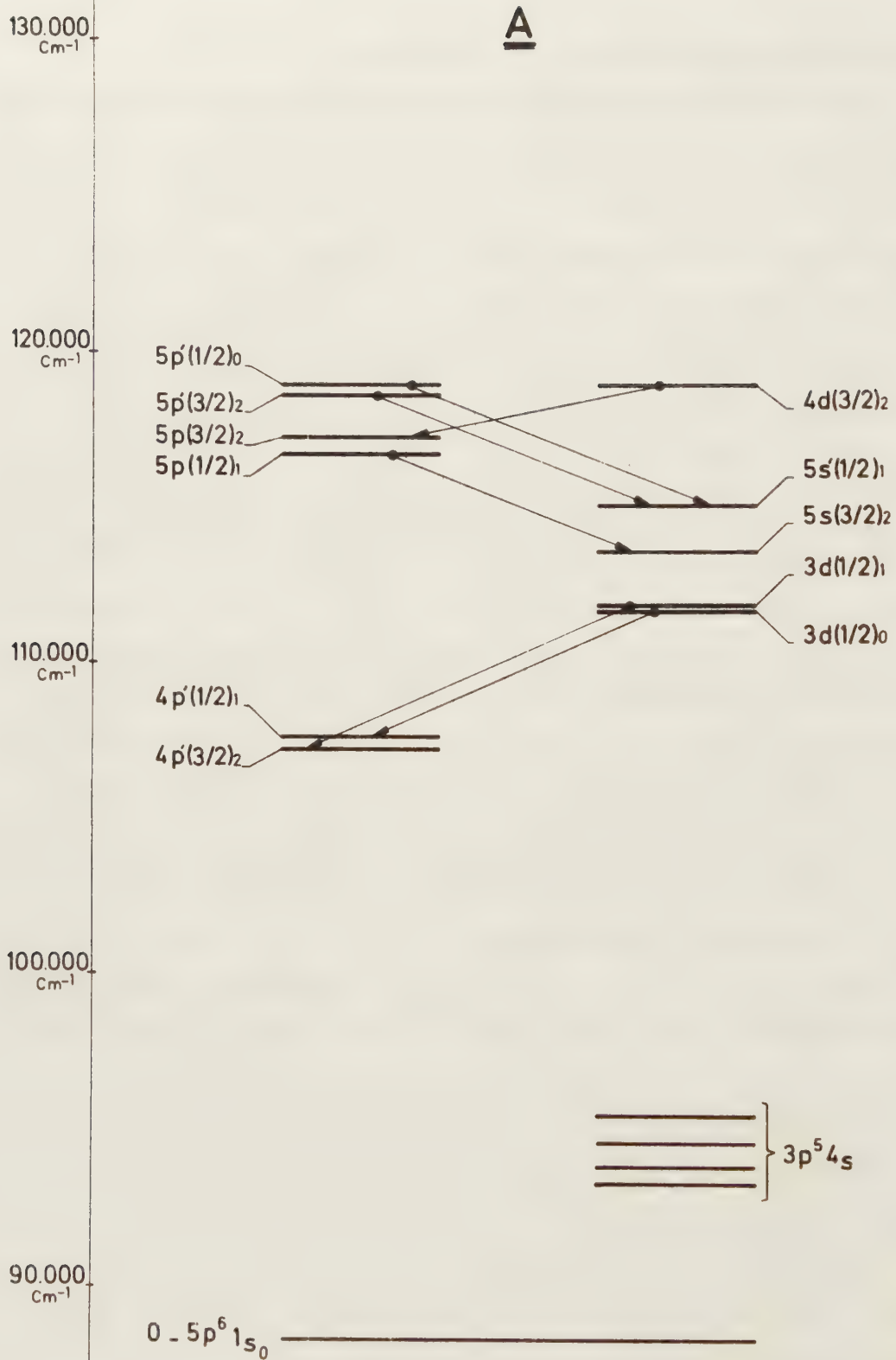


Fig. 28

TABLEAU IV

ECARTS ISOTOPIQUES DANS L'ARGON, EFFET DE BOHR  
SOUSTRAIT.

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | Classification                                                                               | $\delta\sigma(40, 36)$<br>(mk) |
|------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|
| 2, 208                 | $3p^5 3d \left[ \frac{1}{2} \right]_1 \longrightarrow 3p^5 4p' \left[ \frac{3}{2} \right]_2$ | 28, 01                         |
| 2, 397                 | $3d \left[ \frac{1}{2} \right]_0 \longrightarrow 4p' \left[ \frac{1}{2} \right]_1$           | 28, 77                         |
| 2, 567                 | $5p' \left[ \frac{1}{2} \right]_0 \longrightarrow 5s' \left[ \frac{1}{2} \right]_1$          | 1, 21                          |
| 2, 862                 | $5p' \left[ \frac{3}{2} \right]_2 \longrightarrow 5s' \left[ \frac{1}{2} \right]_1$          | 1, 44                          |
| 3, 133                 | $5p \left[ \frac{1}{2} \right]_1 \longrightarrow 5s \left[ \frac{3}{2} \right]_2$            | - 0, 38                        |
| 5, 804                 | $4d \left[ \frac{3}{2} \right]_2 \longrightarrow 5p \left[ \frac{3}{2} \right]_2$            | 11, 47                         |

référence l'ensemble de la configuration  $3p^5 5p$ .

Ce faisant, on se heurte à une petite difficulté : en comparant l'écart des transitions à  $2,567 \mu$  et  $2,862 \mu$ , dont le niveau inférieur  $3p^5 5s' [1/2]_1$  est commun, la différence d'effet isotopique entre les niveaux  $3p^5 5p' [1/2]_0$  et  $3p^5 5p' [3/2]_2$  n'est pas nulle mais vaut :  $0,23 \text{ mk}$ . En conséquence, on ne peut pas attribuer un effet spécifique rigoureusement nul à l'ensemble de la configuration  $3p^5 5p$  ; dans les travaux précédents, cet effet devait être masqué par l'erreur de mesure, vraisemblablement de l'ordre de 1 à 2 mk. La valeur de l'effet spécifique que nous pouvons attribuer aux niveaux suivants n'est ainsi qu'un très bon ordre de grandeur :

$$\delta T_s(3p^5 5s [3/2]_2) \simeq + 0,5 \text{ mk}$$

$$\delta T_s(3p^5 5s' [1/2]_1) \simeq - 1 \text{ mk}$$

$$\delta T_s(3p^5 4d [3/2]_2) \simeq + 11 \text{ mk}.$$

Pour évaluer l'effet spécifique dans la configuration  $3p^5 3d$ , nous pouvons supposer, comme l'indiquent les mesures de V. H. MEYER, que l'effet spécifique reste très faible dans la configuration  $3p^5 4p$  :  $3,5 \text{ mk}$  pour le niveau  $3p^5 4p' [3/2]_2$  et  $1,5 \text{ mk}$  pour le niveau  $3p^5 4p' [1/2]_1$ . La valeur de l'effet spécifique que nous pouvons attribuer aux niveaux suivants n'est ainsi qu'un ordre de grandeur :

$$\delta T_s(3p^5 3d [1/2]_1) \simeq + 25 \text{ mk}$$

$$\delta T_s(3p^5 3d [1/2]_0) \simeq + 25 \text{ mk}.$$

L'interprétation théorique de l'effet spécifique de l'argon a été tentée au laboratoire Aimé-Cotton par M. F. HELEQUIN à partir des fonctions d'onde radiales obtenues par la méthode de Hartree-Fock. Elle montre que l'effet spécifique est constant dans la configuration  $3p^5 4p$  et qu'il varie fortement dans les configurations  $3p^5 3d$  et  $3p^5 4d$  : pour les niveaux  $3p^5 3d [1/2]_0$  et  $3p^5 3d [1/2]_1$ , l'effet spécifique, calculé en prenant comme référence la confi-

guration  $3p^5 4p$ , est de l'ordre de 16 mk.

En définitive, c'est dans cette valeur élevée de l'effet spécifique pour deux niveaux de la configuration  $3p^5 3d$  que réside l'intérêt des mesures sur l'argon. L'importance de l'effet spécifique dû au saut d'un électron  $3d$  a été observé par BAUCHE sur plusieurs autres éléments (63).

## VI - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DANS LE XENON.

Pour cet élément, nous avons mesuré les écarts entre les isotopes 136, 134, 132, 130 et 128 pour quinze transitions entre  $2 \mu$  et  $7,5 \mu$ ; pour le couple (134, 132) nous avons mesuré les écarts de cinq transitions supplémentaires. Les transitions étudiées sont de quatre types :

$5p^5 5d \longrightarrow 5p^5 6p$  (12 transitions pour tous les couples, 15 pour le couple (134, 132)),

$5p^5 5d \longrightarrow 5p^5 7p$  (1 transition pour tous les couples),

$5p^5 7p \longrightarrow 5p^5 7s$  (2 transitions pour tous les couples),

$5p^5 7d \longrightarrow 5p^5 4f$  (2 transitions pour le couple (134, 132)).

Nous avons de plus mesuré l'écart entre l'isotope 132 et l'isotope 129 pour la transition à  $3,50 \mu$ .

Le spectre du xénon est dans l'ensemble semblable à celui de l'argon (80). La configuration  $5p^5 5d$  ne peut être atteinte que par des radiations situées dans l'infrarouge ou dans l'ultraviolet lointain (fig. 29). Au contraire la configuration  $5p^5 6s$ , la plus intéressante pour l'effet de volume, donne des transitions visibles : une étude préliminaire en a été faite en 1951 par J. KOCH et E. RASMUSSEN qui ont mesuré les écarts (136, 134) et (134, 132) de trois transitions du type  $5p^5 6p \longrightarrow 5p^5 6s$  (81). Les mesures montrent, comme la théorie l'indique, la prédominance de l'effet de volume dans les niveaux  $5p^5 6s$ .

Parallèlement JACKSON et COULOMBE ont mesuré, au laboratoire Aimé-Cotton, les écarts entre les isotopes 136, 134, 132, 130, 128, 131 et 129

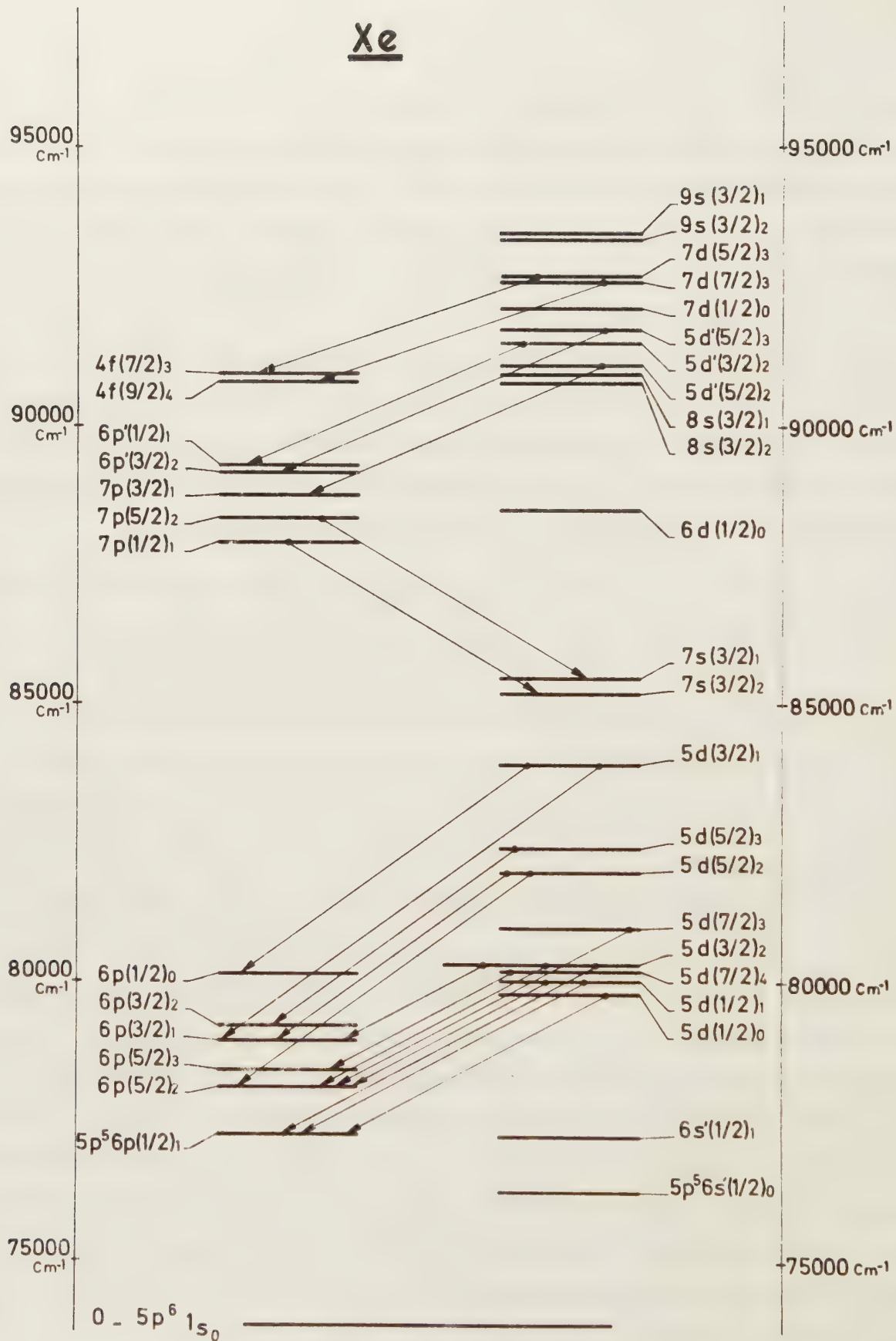


Fig . 29

pour une trentaine de transitions visibles(59); elles sont essentiellement de deux types :

$$5p^5 np \longrightarrow 5p^5 6s \quad (n = 6, 7)$$

$$5p^5 nd \longrightarrow 5p^5 6p \quad (n = 7, 8, 9).$$

Pour toutes ces mesures, la précision est de l'ordre de quelques dixièmes de mk.

#### VI - A - Ecartis isotopiques des transitions

La valeur des écartis isotopiques, effet de Bohr soustrait, est indiquée dans le tableau V : ils résultent donc de la superposition de l'effet spécifique et de l'effet de volume, selon la formule de la page 75.

A la lecture du tableau, on peut faire les remarques suivantes :

- les écartis sont toujours très petits, négatifs pour les transitions  $5p^5 7p \longrightarrow 5p^5 7s$  et en général positifs pour les transitions  $5p^5 5d \longrightarrow 5p^5 6p$ .
- les écartis varient fortement quand on passe du couple (136, 134) au couple (134, 132) puis varient peu du couple (134, 132) aux couples (132, 130) et (130, 128).

#### VI - B - Ecartis isotopiques des niveaux

Il n'est pas question d'évaluer le déplacement isotopique absolu des niveaux mais seulement les variations de l'un à l'autre : pour cela, on attribue à un niveau donné, pris comme référence, un déplacement X et on calcule le déplacement X + Y des autres niveaux par l'intermédiaire des transitions. Le résultat est indiqué dans le tableau VI : le niveau  $5p^5 6p [5/2]_2$  est pris comme référence et les écartis sont calculés pour le couple (134, 132).

On voit immédiatement que les écartis dans les niveaux  $5p^5 6p$  varient très peu alors qu'ils varient beaucoup plus dans les niveaux  $5p^5 5d$  : en particulier le niveau  $5p^5 5d [3/2]_1$  a un écart négatif. On peut expliquer qualitativement ces variations par la présence éventuelle d'effet spécifique et par l'interaction de configurations entre  $5p^5 5d$ ,  $5p^5 6s$  et  $5p^5 7s$ .

TABLEAU V

ECARTS ISOTOPIQUES DANS LE XENON, EFFET DE BOHR SOUSTRAIT

| $\lambda$ ( $\mu$ ) | Classification                                        | $\delta\sigma(136, 134)\text{mk}$ | $\delta\sigma(134, 132)\text{mk}$     | $\delta\sigma(132, 130)\text{mk}$ | $\delta\sigma(130, 128)\text{mk}$ |
|---------------------|-------------------------------------------------------|-----------------------------------|---------------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 2,6518              | $5p^5 \ 5d \ [3/2]_1 \rightarrow 5p^5 \ 6p \ [1/2]_0$ | - 0,19 + 0,02                     | - 0,20 + 0,01                         | - 0,23 + 0,02                     | - 0,24 <sub>5</sub> + 0,02        |
| 3,1078              | $5d \ [5/2]_3 \rightarrow 6p \ [3/2]_2$               | 1,00 + 0,07                       | 0,97 + 0,03                           | 1,03 + 0,03                       | 1,12 + 0,06                       |
| 3,2748              | $5d \ [3/2]_2 \rightarrow 6p \ [1/2]_1$               | 1,29 + 0,02                       | 1,50 + 0,01                           | 1,57 + 0,01                       | 1,58 + 0,03                       |
| 3,3676              | $5d \ [5/2]_2 \rightarrow 6p \ [3/2]_1$               | 0,98 <sub>5</sub> + 0,06          | 1,18 + 0,03                           | 1,18 + 0,05                       | 1,21 + 0,10                       |
| 3,5080              | $5d \ [7/2]_3 \rightarrow 6p \ [5/2]_2$               | 1,08 + 0,08                       | 1,21 + 0,03                           | 1,23 + 0,02                       | 1,33 + 0,04                       |
| 3,6798              | $5d \ [1/2]_1 \rightarrow 6p \ [1/2]_1$               | 1,41 + 0,03                       | 1,34 + 0,02                           | 1,40 + 0,02                       | 1,42 + 0,04                       |
| 3,8697              | $5d \ [5/2]_3 \rightarrow 6p \ [3/2]_2$               | 1,11 + 0,04                       | 1,20 + 0,02                           | 1,23 + 0,01                       | 1,28 + 0,02                       |
| 3,9966              | $5d \ [1/2]_0 \rightarrow 6p \ [1/2]_1$               | 1,49 <sub>5</sub> + 0,06          | 1,32 <sub>5</sub> + 0,02 <sub>5</sub> | 1,35 + 0,04                       | 1,45 <sub>5</sub> + 0,09          |
| 4,1527              | $5d \ [5/2]_2 \rightarrow 7p \ [3/2]_1$               | 0,26 <sub>5</sub> + 0,02          | 0,56 <sub>5</sub> + 0,01              | 0,57 + 0,01                       | 0,57 <sub>5</sub> + 0,02          |
| 4,5393              | $5d \ [3/2]_2 \rightarrow 6p \ [5/2]_2$               | 1,17 + 0,03                       | 1,40 + 0,02                           | 1,44 + 0,01                       | 1,50 + 0,02                       |
| 4,6109              | $5d \ [3/2]_2 \rightarrow 6p \ [1/2]_1$               | 1,11 + 0,01                       | 1,16 + 0,01                           | 1,18 + 0,01                       | 1,21 + 0,02                       |
| 5,5754              | $5d \ [7/2]_4 \rightarrow 6p \ [5/2]_3$               | 1,36 <sub>5</sub> + 0,06          | 1,55 <sub>5</sub> + 0,01              | 1,59 + 0,02 <sub>5</sub>          | 1,59 <sub>5</sub> + 0,06          |
| 7,3167              | $5d \ [3/2]_2 \rightarrow 6p \ [3/2]_1$               | 1,23 + 0,04                       | 1,44 + 0,02                           | 1,48 + 0,01 <sub>5</sub>          | 1,53 + 0,02                       |
| 3,4345              | $7p \ [5/2]_2 \rightarrow 7s \ [3/2]_1$               | - 0,57 + 0,05                     | - 0,18 + 0,05                         | - 0,23 + 0,05                     | - 0,27 + 0,010                    |
| 3,6518              | $7p \ [1/2]_1 \rightarrow 7s \ [3/2]_2$               | - 1,18 + 0,05                     | - 0,71 + 0,05                         | - 0,75 + 0,05                     | - 0,80 + 0,010                    |

TABLEAU VI - ECARTS ISOTOPIQUES DANS LES NIVEAUX

|                              | $5p^5 6p[5/2]_2$<br>$\equiv 0$ | $6p[1/2]_1$<br>$= -0,10$ | $6p[3/2]_1$<br>$= -0,06$ | $6p[1/2]_0$<br>$= -0,14$ |
|------------------------------|--------------------------------|--------------------------|--------------------------|--------------------------|
| $1,12 =$<br>$5p^5 5d[5/2]_2$ | 1,12                           |                          | 1,18                     |                          |
| $1,21 =$<br>$5d[7/2]_3$      | 1,21                           |                          |                          |                          |
| $1,40 =$<br>$5d[3/2]_2$      | 1,40                           | 1,50                     | 1,44                     |                          |
| $1,25_5 =$<br>$5d[1/2]_1$    | $1,25_5$                       | 1,34                     |                          |                          |
| $1,22_5 =$<br>$5d[1/2]_0$    |                                | $1,32_5$                 |                          |                          |
| $-0,34 =$<br>$5d[3/2]_1$     |                                |                          | -0,28                    | -0,20                    |

A l'aide des mesures de KOCH et RASMUSSEN, de JACKSON et COULOMBE, il est possible d'évaluer l'effet isotopique dans de nouvelles configurations mais, étant données la valeur des écarts et la précision des mesures, on ne peut guère donner qu'un ordre de grandeur de l'écart isotopique pour chaque configuration.

#### VI - C - Etude du déplacement isotopique relatif

Les valeurs des déplacements isotopiques relatifs pour les différents couples d'isotopes sont indiquées, pour les quinze raies, dans le tableau VII, avec :

$$\rho = \frac{\delta\sigma(134, 132)}{\delta\sigma(136, 134)} \quad \rho' = \frac{\delta\sigma(132, 130)}{\delta\sigma(134, 132)} \quad \rho'' = \frac{\delta\sigma(130, 128)}{\delta\sigma(132, 130)}$$

Des variations de  $\rho$ , on déduit immédiatement que l'effet spécifique a des valeurs importantes, différentes d'une transition à l'autre et que l'effet de volume total est différent dans les couples (136, 134) et (134, 132).

Au contraire,  $\rho'$  et  $\rho''$  ont, à la précision des mesures, une valeur constante et égale à 1,03. Quand on passe du couple (134, 132) aux couples (132, 130) et (130, 128), l'effet spécifique augmente dans le rapport 1,03 (l'effet de volume pur reste à peu près constant si l'on admet toutefois que le rayon nucléaire soit la loi  $R_M = R_0 M^{1/3}$ ). Nous sommes donc amenés à conclure que l'effet de volume total reste à peu près constant dans les couples (134, 132), (132, 130) et (130, 128) :

$$F. C_v(132, 130) \neq F. C_v(134, 132)$$

$$F. C_v(130, 128) \neq F. C_v(132, 130).$$

#### VI - D - Etude de l'accroissement d'écart relatif $\Delta$

Nous ne nous occuperons ici que des variations de  $\Delta = \delta\sigma(134, 132) - \delta\sigma(136, 134) \cdot 1,03$  ; pour les autres couples d'isotopes,  $\Delta$  est trop peu différent de 0. D'une façon générale, le signe de  $\Delta$  indique dans quel niveau supérieur ou infé-

TABLEAU VII

| $\lambda$ ( $\mu$ ) | Classification                                            | $\rho$          | $\rho'$             | $\rho''$            | $\Delta$ (mk)    |
|---------------------|-----------------------------------------------------------|-----------------|---------------------|---------------------|------------------|
| 2, 6518             | $5p^5 \ 5d \ [3/2]_1 \longrightarrow 5p^5 \ 6p \ [1/2]_0$ | $1,05 \pm 0,15$ | $1,15 \pm 0,16$     | $1,07 \pm 0,16$     | $0 \pm 0,02$     |
| 3, 1078             | $5d \ [5/2]_3 \longrightarrow 6p \ [3/2]_2$               | $0,97 \pm 0,10$ | $1,06_5 \pm 0,06$   | $1,08 \pm 0,09$     | $-0,06 \pm 0,07$ |
| 3, 2748             | $5d \ [3/2]_2 \longrightarrow 6p \ [1/2]_1$               | $1,16 \pm 0,03$ | $1,04_5 \pm 0,02$   | $1,01 \pm 0,02_5$   | $0,17 \pm 0,02$  |
| 3, 3676             | $5d \ [5/2]_2 \longrightarrow 6p \ [3/2]_1$               | $1,20 \pm 0,10$ | $1 \pm 0,07$        | $1,02_5 \pm 0,12$   | $0,16 \pm 0,06$  |
| 3, 5080             | $5d \ [7/2]_3 \longrightarrow 6p \ [5/2]_2$               | $1,12 \pm 0,10$ | $1,01_5 \pm 0,03_5$ | $1,08 \pm 0,05$     | $0,10 \pm 0,08$  |
| 3, 6798             | $5d \ [1/2]_1 \longrightarrow 6p \ [1/2]_1$               | $0,95 \pm 0,04$ | $1,04_5 \pm 0,03$   | $1,01 \pm 0,04_5$   | $-0,11 \pm 0,03$ |
| 3, 8697             | $5d \ [5/2]_3 \longrightarrow 6p \ [3/2]_2$               | $1,08 \pm 0,06$ | $1,02_5 \pm 0,03$   | $1,04 \pm 0,02_5$   | $0,06 \pm 0,04$  |
| 3, 9966             | $5d \ [1/2]_0 \longrightarrow 6p \ [1/2]_1$               | $0,89 \pm 0,06$ | $1,02 \pm 0,04$     | $1,08 \pm 0,10$     | $-0,22 \pm 0,06$ |
| 4, 1527             | $5d \ [5/2]_2 \longrightarrow 7p \ [3/2]_1$               | $2,10 \pm 0,2$  | $1,05_5 \pm 0,03_5$ | $1,01 \pm 0,06$     | $0,29 \pm 0,02$  |
| 4, 5393             | $5d \ [3/2]_2 \longrightarrow 6p \ [5/2]_2$               | $1,19 \pm 0,04$ | $1,03 \pm 0,02_5$   | $1,04 \pm 0,02$     | $0,19 \pm 0,03$  |
| 4, 6109             | $5d \ [3/2]_2 \longrightarrow 6p \ [1/2]_1$               | $1,05 \pm 0,03$ | $1,02 \pm 0,02_5$   | $1,02_5 \pm 0,02_5$ | $0,02 \pm 0,02$  |
| 5, 5754             | $5d \ [7/2]_4 \longrightarrow 6p \ [5/2]_3$               | $1,14 \pm 0,10$ | $1,02_5 \pm 0,02_5$ | $1 \pm 0,05$        | $0,15 \pm 0,06$  |
| 7, 3167             | $5d \ [3/2]_2 \longrightarrow 6p \ [3/2]_1$               | $1,17 \pm 0,05$ | $1,03_5 \pm 0,02$   | $1,03 \pm 0,02$     | $0,17 \pm 0,04$  |
| 3, 4345             | $7p \ [5/2]_2 \longrightarrow 7s \ [3/2]_1$               | $0,32 \pm 0,10$ | $1,30 \pm 0,6$      | $1,20 \pm 0,5$      | $0,40 \pm 0,10$  |
| 3, 6518             | $7p \ [1/2]_1 \longrightarrow 7s \ [3/2]_2$               | $0,60 \pm 0,07$ | $1,05 \pm 0,15$     | $1,06 \pm 0,2$      | $0,50 \pm 0,10$  |

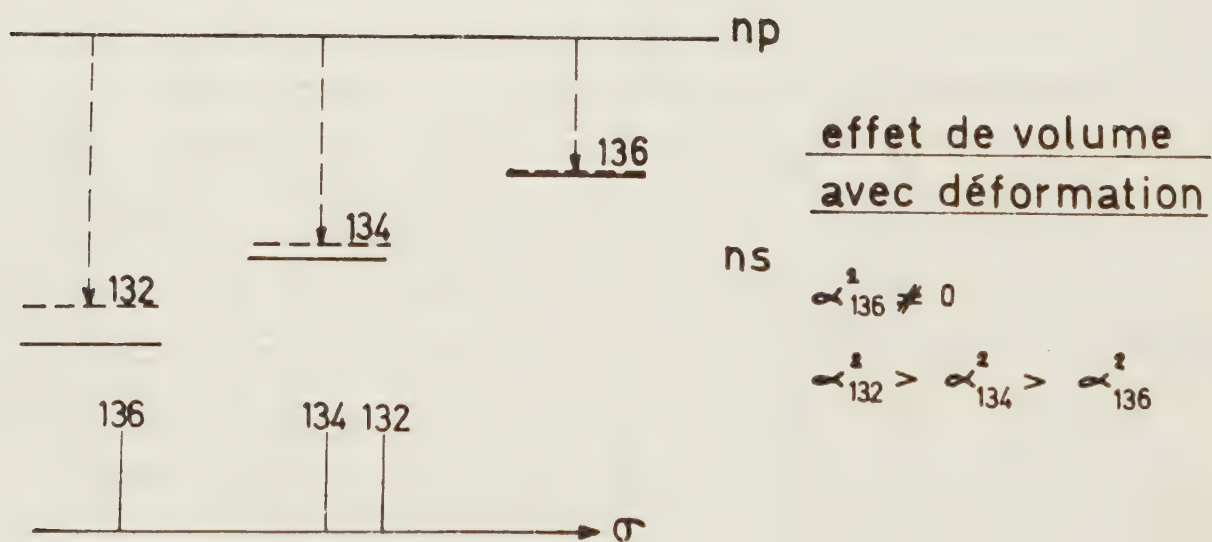
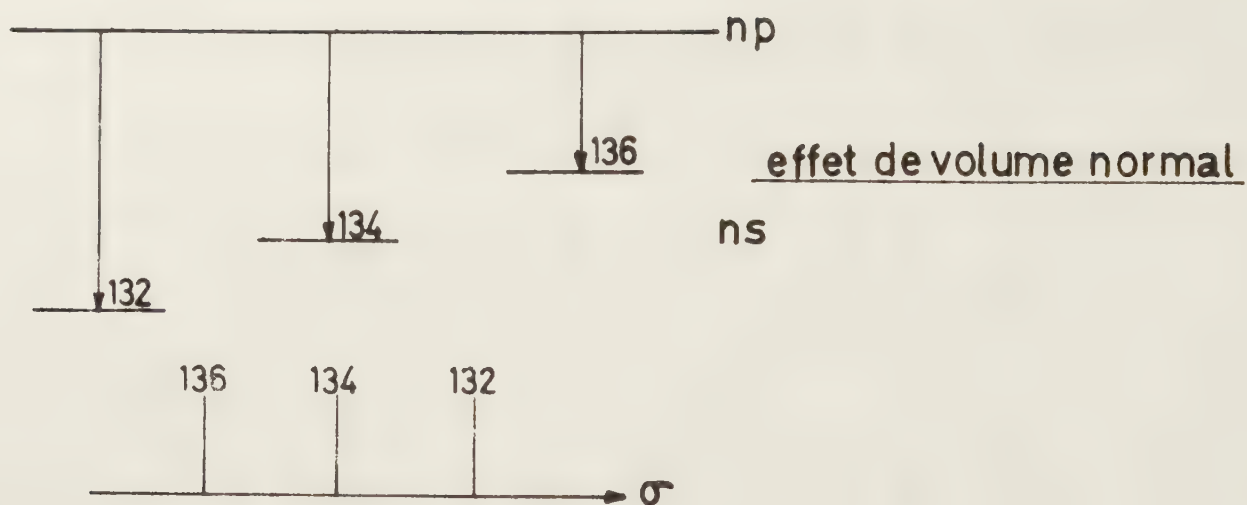


Fig. 30

rieur, l'effet de volume est prépondérant; en effet considérons une transition du type  $5p^5 np \longrightarrow 5p^5 ns$  dont nous savons que l'effet de volume est prépondérant dans le niveau inférieur, les écarts étant négatifs (voir fig. 30).

La déformation du noyau conduit à augmenter l'effet de volume total des niveaux. L'isotope 136, correspondant au nombre magique de neutrons 82, est le moins déformé; les mesures de KOCH et RASMUSSEN, de JACKSON et COULOMBE montrent que la déformation augmente de plus en plus vite lorsque le nombre de neutrons diminue, tout au moins près du nombre magique et si l'on admet que le rayon varie régulièrement avec la masse. On a alors, pour l'effet de volume :

$$|\delta\sigma(136, 134)| > |\delta\sigma(134, 132)| \quad \text{et} \\ \Delta = (\delta\sigma(134, 132) - \delta\sigma(136, 134). 1,03) > 0$$

Au contraire lorsque l'effet de volume est prépondérant dans le niveau supérieur, les écarts sont positifs et  $\Delta$  est négatif. D'après l'expression de  $\Delta$  indiquée au paragraphe III, l'effet de volume total des différentes raies est proportionnel à la valeur correspondante de  $\Delta$  : à partir des valeurs de  $\Delta$  indiquées dans le tableau VII, nous pouvons classer les transitions étudiées en trois types :

#### VI - D - I - Transitions pour lesquelles $\Delta$ est $> 0$

C'est le cas des transitions  $5p^5 7p \longrightarrow 5p^5 7s$  et de la majorité des raies  $5p^5 5d \longrightarrow 5p^5 6p$  : l'effet de volume est prépondérant dans le niveau inférieur. Les trois transitions à  $3,27\mu$ ,  $4,53\mu$  et  $7,31\mu$ , dont le niveau supérieur est commun, ont des valeurs de  $\Delta$  identiques aux erreurs expérimentales près ; la raie à  $4,15\mu$  a une valeur de  $\Delta$  comparable à celles des raies à électron s. L'étude du mélange des configurations menée au laboratoire par LIBERMAN (82) montre que les niveaux sont, ou purs, ou seulement mélangés à des niveaux présentant des caractéristiques semblables : par exemple certains niveaux  $5p^5 6p$  sont mélangés à des niveaux  $5p^5 7p$ .

# VI - D - 2 - Transitions pour lesquelles $\Delta$ est peu différent de 0

C'est le cas de la transition à  $2,65 \mu$  ( $5p^5 5d [3/2]_1 \rightarrow 5p^5 6p [1/2]_0$ ) et des transitions du type  $5p^5 5d' \rightarrow 5p^5 6p'$ . L'effet de volume est pratiquement égal dans les deux niveaux et l'effet isotopique se réduit à l'effet spécifique dont on peut ainsi obtenir un ordre de grandeur.

$$2,65 \mu : \delta T_s(134, 132) \simeq -0,2 \text{ mk}$$

$$3,86 \mu : \delta T_s(134, 132) \simeq 1,4 \text{ mk}$$

$$4,61 \mu : \delta T_s(134, 132) \simeq 1,2 \text{ mk.}$$

# VI - D - 3 - Transitions pour lesquelles $\Delta$ est $< 0$

C'est le cas des deux transitions à  $3,67 \mu$  ( $5p^5 5d [1/2]_1 \rightarrow 5p^5 6p [1/2]_1$ ) et  $3,99 \mu$  ( $5p^5 5d [1/2]_0 \rightarrow 5p^5 6p [1/2]_1$ ) : l'effet de volume est prépondérant dans les niveaux supérieurs. L'étude du mélange de configurations montre que ces niveaux sont fortement mélangés aux niveaux  $5p^5 6s' [1/2]_1$  et  $5p^5 6s' [1/2]_0$ , à 26% et 34%; ce phénomène explique l'importance de l'effet de volume dans les niveaux supérieurs; connaissant la valeur de l'effet de volume dans les niveaux  $5p^5 6s$ , nous devrions pouvoir vérifier la loi de partage (cf. parag. II-E-).

# VI - E - Interprétation à partir des valeurs de $|\Psi(o)_{ns}|^2$ calculées par la méthode de Hartree-Fock

Nous avons calculé (avec l'aide de R. J. CHAMPEAU) les valeurs de  $|\Psi(o)_{ns}|^2$  pour tous les électrons des configurations  $5p^5 5d$  et  $5p^5 6s$  par la méthode de Hartree-Fock et en utilisant le programme de calcul de C. FROESE-FISCHER; au cours de ce calcul nous avons eu connaissance de calculs analogues portant, en outre sur les configurations  $5p^5 7s$ ,  $5p^5 6p$  et  $5p^5 7p$ , exécutés par M. WILSON. On trouvera en annexe les valeurs de  $\sum |\Psi(o)_{ns}|^2$  calculées à partir des résultats que Wilson nous a aimablement communiqués (83).

Nous sommes donc en mesure de calculer théoriquement les valeurs de l'effet de volume des différentes transitions, en supposant que la quantité  $C_v$  du chapitre III soit connue ; en fait, il est préférable de calculer le rapport de l'effet de volume de chaque transition à l'effet de volume d'une transition prise comme référence (on élimine  $C_v$ ). En comparant le rapport ainsi obtenu  $r_{th}$  au rapport  $r_{exp}$  calculé à partir du diagramme de King ( $r_{exp}$  est égal à la pente des droites), nous obtenons un test de la validité des calculs théoriques.

Nous avons fait le calcul en prenant comme référence, la raie à  $3,27 \mu$ . La figure 31 montre le diagramme de King et le tableau ci-dessous montre les valeurs de  $r_{th}$  et  $r_{exp}$  pour les transitions : L'accord est rela-

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | $r_{th}$ | $r_{exp}$ |
|------------------------|----------|-----------|
| 3,36                   | 0,7      | 0,95      |
| 3,50                   | 0,9      | 0,6       |
| 3,67                   | - 1,6    | - 0,7     |
| 3,99                   | - 2,1    | - 1,3     |
| 4,15                   | 1,90     | 1,80      |
| 4,54                   | 1        | 1,15      |
| 5,57                   | 1,50     | 0,85      |
| 7,31                   | 1        | 1         |
| 3,43                   | 2,3      | 2,4       |
| 3,65                   | 2,3      | 2,9       |

tivement bon en particulier pour les raies dont l'effet de volume est important. Pour les raies à  $3,99 \mu$  et  $3,67 \mu$  l'accord est moins bon, mais le calcul rend bien compte du signe de l'effet de volume (pour ces raies il y a un fort mélange entre  $5p^5 5d$  et  $5p^5 6s$ ).

L'accord est beaucoup moins bon pour les raies dont l'effet de volume est petit.

Nous pouvons désormais comprendre d'où vient l'effet de volume dans les transitions  $5p^5 5d \rightarrow 5p^5 6p$  pour lesquelles  $\Delta$  est positif : on constate en

effet que la densité de probabilité de présence au noyau des électrons  $5s$  est notablement plus petite dans la configuration  $5p^5 5d$  que dans la configuration  $5p^5 6p$  (ce n'est pas vrai pour les électrons plus internes). On peut donc associer à l'électron  $5d$  un effet d'écran qui est responsable de l'effet de volume observé.



De même la densité de probabilité de présence au noyau des électrons 5s est plus forte dans la configuration  $5p^5 7p$  que dans la configuration  $5p^5 6p$ , d'où un effet de volume plus important dans la transition  $5p^5 5d \rightarrow 5p^5 7p$  à 4,15  $\mu$ .

Ce diagramme de King montre de plus que pour la majorité des transitions, l'effet spécifique est important, il rend compte de la plus grande partie de l'écart isotopique mesuré. Il n'est pas possible actuellement de l'évaluer théoriquement.

VI - F - Effet de volume dans la transition  $5p^5 7p [1/2]_1 \rightarrow 5p^5 7s [3/2]_2$  à 3,65  $\mu$

Nous allons tenter de calculer l'effet de volume total dans cette transition à l'aide des théories existantes; le niveau  $7s [3/2]_2$  est vraisemblablement moins perturbé que le niveau  $7s [3/2]_1$  de la transition à 3,43  $\mu$ . Il faut d'abord évaluer l'influence de la déformation puis calculer le facteur électronique F.

#### VI - F - 1 - Coefficients de déformation des isotopes du xénon

Ils ont été mesurés par spectrométrie nucléaire pour les isotopes 132, 128 et 126 (84) et leur valeur peut être évaluée théoriquement à partir des cartes de E. MARSHALEK, L. W. PERSON et R. K. SHELIN (85).

| isotopes<br>du xénon | $\beta^2$ théoriques | $\beta^2$ expérimentaux |
|----------------------|----------------------|-------------------------|
| 124                  | 90 $10^{-3}$         |                         |
| 126                  | 36 $10^{-3}$         | 36 $10^{-3}$            |
| 128                  | 28,5 $10^{-3}$       | 29 $10^{-3}$            |
| 130                  | 21 $10^{-3}$         |                         |
| 132                  | 13,5 $10^{-3}$       | 13,5 $10^{-3}$          |
| 134                  | 8 $10^{-3}$          |                         |
| 136                  |                      |                         |

Nos mesures montrent que :

$$\delta T_{\text{vol. tot.}}(134, 132) \neq \delta T_{\text{vol. tot.}}(132, 130) \neq \delta T_{\text{vol. tot.}}(130, 128).$$

Si nous admettons que le rayon nucléaire suit une loi de variation régulière en fonction de la masse, nous pouvons évaluer les coefficients de déformation nucléaire pour les isotopes 134 et 130, en interpolant à partir des valeurs de ces coefficients pour les isotopes 132 et 128. Nous obtenons ainsi :

$$\beta_{134}^2 \simeq 5,5 \cdot 10^{-3}$$

$$\beta_{130}^2 \simeq 21 \cdot 10^{-3}$$

#### VI - F - 2 - Rapport de l'effet de déformation à l'effet de volume pur

Nous pouvons évaluer l'effet de déformation à partir de la relation :

$$\frac{\delta T_{\text{déf.}}}{\delta T_{\text{vol. pur}}} = \frac{3}{10} (2\sigma + 3) M \left( \frac{\delta(\alpha^2)}{\delta M} \right)_Z \quad (\text{cf. parag. II - C -})$$

Avec les valeurs de  $\alpha^2$  tirées du paragraphe précédent, nous calculons :

$$\frac{\delta T_{\text{déf.}}}{\delta T_{\text{vol. pur}}}(134, 132) = -0,31$$

Ce rapport est identique à celui évalué par L. WILETS, D. L. HILL et K. W. FORD (86) à partir de la relation précédente et des mesures de KOCH et RASMUSSEN. En tenant compte du coefficient  $\xi$  de FRADKIN, il se-rait réduit d'un facteur 2, et nous aurions :

$$\frac{\delta T_{\text{déf.}}}{\delta T_{\text{vol. pur}}}(134, 132) = -0,16.$$

### VI - F - 3 - Effet de volume pur de l'électron 7s

Il est donné par la relation :

$$\delta T_{\text{vol. pur}}(134, 132) (7s) = \frac{C_{\text{th}}}{n_a^3(7s)} \left(1 - \frac{d\Delta}{dn}\right)$$

A partir de la position des niveaux  $5p^5 6s [3/2]_2$ ,  $5p^5 7s [3/2]_2$  et  $5p^5 8s [3/2]_2$ , nous avons calculé :

$$\frac{d\Delta}{dn} = - 0,025$$

$$n_a^3(7s) = 25,4$$

A partir de la valeur  $C_{\text{th}} = 87$  et en tenant compte des diverses corrections vues au paragraphe II - C - nous calculons :

$$\delta T_{\text{vol. pur}}(134, 132) (7s) = + 2,20 \text{ mk.}$$

### VI - F - 4 - Effet de volume total de l'électron 7s

On fait alors intervenir l'influence de la déformation : avec un rapport  $\frac{\text{effet de déf.}}{\text{effet de vol. pur}}$  de l'ordre de 0,31, on arrive à :

$$\delta T_{\text{vol. tot.}}(134, 132) (7s) = + 1,50 \text{ mk.}$$

Avec une valeur de ce rapport égale à 0,16 ( avec coefficient de FRADKIN ), on arrive à :

$$\delta T_{\text{vol. tot.}}(134, 132) (7s) = + 1,85 \text{ mk.}$$

VI - F - 5 - Effet de volume total dans la transition à  $3,65 \mu$

Il faut tenir compte en plus de l'effet de volume de l'électron

$7p [1/2]_1$  : pour l'évaluer, nous pouvons utiliser les mesures de JACKSON et COULOMBE. Elles montrent que l'effet de volume dans les transitions  $5p^5 7p \rightarrow 5p^5 6s$  est toujours plus petit que l'effet de volume dans les transitions  $5p^5 6p \rightarrow 5p^5 6s$ . Ainsi l'effet de volume dans  $5p^5 7p$  ne serait pas négligeable : nous pouvons lui attribuer une valeur de l'ordre de 0,5 mk pour le couple (134, 132). En considérant que le rapport  $\frac{\text{effet de déf.}}{\text{effet de vol. pur}}$  est compris entre 0,16 et 0,31 (avec et sans coefficient  $\frac{1}{2}$  de FRADKIN), nous pouvons écrire :

$$\underline{\delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132) (3,65 \mu) \simeq - 1,20 \text{ mk.}}$$

VI - F - 6 - Calcul de l'effet de volume total dans la transition à  $3,65 \mu$  à l'aide des valeurs de  $|\psi(o)_{ns}|^2$  calculées selon la méthode de Hartree-Fock

On obtient ici directement l'effet de volume pur dans la transition à partir des valeurs de  $4\pi \sum |\psi(o)_{ns}|^2$  données en annexe et en tenant compte du mélange de configurations qui existe entre  $5p^5 6p$  et  $5p^5 7p$  (le niveau  $5p^5 7p [1/2]_1$  est pur à 80%) :

$$4\pi \sum |\psi(o)_{ns}|^2 = - 6,25 \text{ u. a.}$$

Avec la valeur de  $C_{th} = 87$  et en tenant compte des corrections vues au paragraphe II - C - on calcule :

$$\underline{\delta T_{\text{vol. pur}} (134, 132) (3,65 \mu) = - 1,60 \text{ mk}}$$

et en considérant que le rapport  $\frac{\text{effet de déf.}}{\text{effet de vol. pur}}$  est compris entre 0,16 et 0,31, on calcule l'effet de volume total :

$$\underline{\delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132) (3,65 \mu) = - 1,20 \text{ mk.}}$$

VI - F - 7 - Calcul de l'effet de volume total dans la transition à  $3,65 \mu$  à l'aide de la théorie de IONESCO-PALLAS

L'effet de volume total est donné par la relation :

$$\delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132) (3, 65 \mu) = F. C_{\text{izo}} . Q(n)$$

$C_{\text{izo}}$  est calculée à partir de  $C_{\text{izo}}^{\text{standard}}$  en tenant compte de la valeur des coefficients de déformation nucléaire.  $Q(n)$  est un coefficient dû à la distribution de charge de Elton.

$$C_{\text{izo}} = 47,7 \quad , \quad Q(n) = 0,9 \quad , \quad C_{\text{izo}}^{\text{standard}} = 90,6 .$$

En utilisant la valeur  $4\pi \sum |\psi(0)_{\text{ns}}|^2 = -6,25 \text{ u. a.}$  , on calcule :

$$\delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132) (3, 65 \mu) = - 1,25 \text{ mk.}$$

VI - F - 8 - Calcul de l'effet de volume total dans la transition à  $3,65 \mu$  à l'aide de la corrélation de GERSTENKORN

GERSTENKORN donne la relation suivante, pour le xénon :

$$\frac{\delta T_{\text{vol. tot.}} (136, 132)}{\delta T_{\text{vol. tot.}} (136, 134)} = 1,79 \quad \text{Avec :}$$

$$\delta T_{\text{vol. tot.}} (136, 132) = \delta T_{\text{vol. tot.}} (136, 134) + \delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132)$$

$$\Delta = \left( \delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132) - \delta T_{\text{vol. tot.}} (136, 134) . 1,03 \right) = 0,50 \text{ mk}$$

$$\text{on calcule : } \delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132) (3, 65 \mu) = - 1,60 \text{ mk.}$$

VI - F - 9 - Comparaison entre les diverses valeurs de  $\delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132)$  de la transition à  $3,65 \mu$

Nous avons calculé de quatre façons différentes l'effet de volume

total dans la transition à  $3,65\mu$  et obtenu les valeurs :

- 1,20 mk , - 1,20 mk , - 1,25 mk , - 1,60 mk .

Les trois première supposent que la valeur des coefficients de déformation est correcte et que les valeurs du facteur électronique  $F$  calculées à partir des niveaux de la série  $5p^5$  ns d'une part et à l'aide de la méthode de Hartree-Fock d'autre part sont également correctes. Nous avons de plus tenu compte d'une valeur moyenne du rapport  $\frac{\text{effet de déf.}}{\text{effet de vol. pur}}$

La quatrième valeur de l'effet de volume ne s'appuie par contre sur aucune théorie.

Connaissant l'ordre de grandeur de l'effet de volume total dans la transition à  $3,65\mu$  , nous pouvons évaluer l'effet spécifique de cette transition et à l'aide du diagramme de King, évaluer l'effet spécifique des autres transitions; en procédant de cette façon nous ne pouvons bien entendu obtenir qu'un ordre de grandeur.

#### VI - G - Effet spécifique de diverses transitions

En supposant que l'effet de volume dans la transition à  $3,65\mu$  a la valeur:  $\delta T_{\text{vol. tot.}}(134, 132) \simeq - 1,30 \text{ mk}$  , nous pouvons évaluer l'effet spécifique :

$$\delta T_{\text{spécif.}}(134, 132) = \delta \sigma(134, 132) - \delta T_{\text{vol. tot.}}(134, 132) = + 0,60 \text{ mk}$$

$$\underline{\delta T_{\text{spécif.}}(134, 132) \simeq 0,60 \text{ mk} .}$$

Avec cette valeur de l'effet spécifique pour la transition à  $3,65\mu$  on évalue l'effet spécifique puis l'effet de volume des autres transitions. Le résultat de ces estimations est contenu dans le tableau ci-contre (tableau VIII). Les valeurs ainsi estimées rendent bien compte des différentes conclusions que nous avons faites précédemment en particulier pour les raies dont la valeur de  $\Delta$  est négative.

TABLEAU VIII

| $\lambda$<br>( $\mu$ ) | $\delta T_{\text{spécif.}} (134, 132)$<br>(mk) | $\delta T_{\text{vol. tot.}} (134, 132)$<br>(mk) |
|------------------------|------------------------------------------------|--------------------------------------------------|
| 2,6518                 | - 0,20                                         | 0                                                |
| 3,1078                 | 0,80                                           | 0,20                                             |
| 3,2748                 | 1,90                                           | - 0,40                                           |
| 3,3676                 | 1,60                                           | - 0,40                                           |
| 3,5080                 | 1,50                                           | - 0,30                                           |
| 3,6798                 | 1,0                                            | + 0,30                                           |
| 3,8697                 | 1,40                                           | - 0,20                                           |
| 3,9966                 | 0,70                                           | + 0,60                                           |
| 4,1527                 | 1,20                                           | - 0,60                                           |
| 4,5393                 | 1,90                                           | - 0,50                                           |
| 4,6109                 | 1,20                                           | 0                                                |
| 5,5754                 | 1,90                                           | - 0,30                                           |
| 7,3167                 | 1,80                                           | - 0,40                                           |
| 3,6518                 | 0,60                                           | - 1,30                                           |
| 3,4345                 | 0,90                                           | - 1,10                                           |

Très récemment, J. H. SHAFER (87) a mesuré les écarts

$\delta\sigma(136, 134)$  et  $\delta\sigma(134, 132)$  pour la transition à  $2,02\mu$ . Nous pouvons ainsi tracer la droite relative à cette raie dans le diagramme de King. En se basant sur l'hypothèse que l'effet de volume et l'effet spécifique sont ou très faibles ou varient très peu dans les niveaux  $5p^56p$  on est amené à conclure que cette transition, de même niveau supérieur que la transition à  $2,65\mu$ , doit avoir même effet de volume et même effet spécifique. C'est effectivement ce que l'on constate dans le diagramme de King.

#### VI - H - Etude de l'écart (132, 129)

Nous avons mesuré (cf. chapitre III, paragraphe IV) l'écart entre l'isotope 132 et l'isotope 129 pour la transition à  $3,50\mu$ . Après déduction de l'effet de Bohr, nous obtenons :

$$\delta\sigma(132, 129) = (1,50 \pm 0,15) \text{ mk}.$$

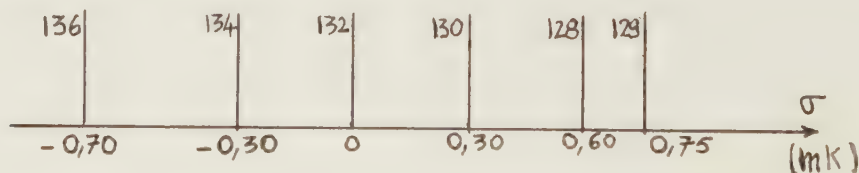
En supposant que l'évaluation de l'effet de volume et de l'effet spécifique soit correcte, il est possible de déterminer l'effet de volume pour le couple (132, 129). Pour la transition à  $3,50\mu$  et pour une différence de masse de trois neutrons, l'effet spécifique prendrait la valeur :

$$\delta T_{\text{spécif.}}(132, 129) \simeq 2,25 \text{ mk}.$$

Cette valeur entraîne pour l'effet de volume :

$$\delta T_v(132, 129) \simeq -0,75 \text{ mk}.$$

Connaissant la valeur de  $\Delta = 0,10 \text{ mk}$  pour la transition et les valeurs de  $\delta T_v(134, 132) \neq \delta T_v(132, 130) \neq \delta T_v(130, 128) \simeq -0,30 \text{ mk}$ , nous pouvons placer les différents isotopes selon le diagramme ci-dessous uniquement relatif à l'effet de volume :



Ainsi l'isotope 129 ne serait pas placé entre l'isotope 130 et l'isotope 128; cependant étant données la précision de la mesure  $\delta\sigma(132, 129)$  et l'incertitude due à l'évaluation de l'effet de volume et de l'effet spécifique, la position de l'isotope 129 est finalement mal déterminée. Nous pouvons seulement conclure qualitativement en prévoyant que l'isotope 129 n'est certainement pas placé au centre de l'écart (130, 128) . Cet effet ("odd-even staggering") a été observé dans plusieurs autres éléments (66) (88) (89) .



## CONCLUSION.

---

Dans le cas du xénon, élément de masse moyenne, on ne peut absolument pas négliger l'effet spécifique de masse devant l'effet de volume. Pour les raies infrarouges, l'influence de l'effet spécifique est certainement plus grande que pour les raies visibles faisant intervenir un électron  $6s$  mais cela n'a pas grande importance, le véritable problème qui reste posé étant celui de l'évaluation précise de l'effet spécifique. A défaut de celle-ci, on ne peut atteindre que l'évolution de l'effet de volume dans la série des différents isotopes et la précision que l'on peut obtenir sur les raies laser infrarouges permet de la suivre dans de bonnes conditions.

Nos mesures montrent que dans les transitions  $5p^5 7p \rightarrow 5p^5 7s$ , si l'effet de volume rend effectivement compte de la plus grande partie de l'écart mesuré, l'effet spécifique n'est pas négligeable pour autant; à l'inverse dans les transitions  $5p^5 5d \rightarrow 5p^5 6p$ , l'effet spécifique est prépondérant mais l'effet de volume est plus important que la théorie ne le laisserait prévoir. Ce phénomène semble être lié à un effet d'écran des électrons  $5d$  sur les électrons  $s$  du coeur.

L'effet de volume des différentes transitions du type  $5p^5 5d \rightarrow 5p^5 6p$  rapporté à l'effet de volume d'une transition prise comme référence (pente des droites dans le diagramme de King) varie fortement. Ceci peut s'expliquer par l'interaction de configurations. Ainsi dans la configuration  $5p^5 5d$ , les niveaux mélangés aux niveaux  $5p^5 6s$  ont un effet de volume de signe opposé.

L'égalité des écarts  $\delta\sigma(134, 132)$ ,  $\delta\sigma(130, 128)$  et  $\delta\sigma(130, 128)$  montre l'égalité de l'effet de volume total dans les différents couples d'isotopes; si l'on admet que le rayon nucléaire varie régulièrement avec la masse, il est possible d'évaluer les coefficients de déformation nucléaire des isotopes 130 et 134 connaissant ceux des isotopes 128 et 132. La mesure de la position de l'isotope 129 par rapport à l'isotope 132 permet de mettre en évidence pour

le xénon, l'existence d'un phénomène d "odd-even staggering".

Enfin les mesures relatives à l'argon montrent que l'effet spécifique prend dans certaines transitions des valeurs importantes; en particulier dans les configurations  $3p^5 3d$  et  $3p^5 4d$ , il atteint des valeurs de l'ordre de 25 mk et 11 mk tandis qu'il reste très faible dans les configurations  $3p^5 4p$  et  $3p^5 5s$ .

La première méthode de spectroscopie laser que nous avons réalisée nous a donc permis de mesurer des écarts isotopiques depuis des valeurs très faibles jusqu'à des valeurs moyennes de l'ordre de 35 mk. Des mesures analogues devraient être possibles dans un proche avenir sur les isotopes 126 et 124 du xénon, très pauvres dans le mélange naturel mais dont l'étude devrait être particulièrement intéressante. En plus de la mesure des écarts isotopiques, cette méthode nous a permis d'aborder l'étude du déplacement des raies spectrales sous l'influence de la pression et de l'intensité du courant de décharge.

Prévue à l'origine pour l'étude des déplacements isotopiques dans les mélanges de gaz, la deuxième méthode décrite a été peu exploitée puisque nous avons pu disposer au cours de ce travail d'isotopes suffisamment enrichis.

Sa mise au point a été longue et délicate; elle pourrait être considérée comme achevée mais l'utilisation d'un programme de dépouillement et l'emploi d'un laser asservi en fréquence pour le contrôle plus précis de la fréquence du laser monochromateur devraient permettre d'augmenter la précision générale de la méthode. En plus de la mesure des écarts isotopiques et des structures hyperfines de faible valeur, nous pensons surtout à utiliser cette méthode pour l'étude simultanée du déplacement des raies spectrales et des profils de raies, dans des conditions de luminosité et de résolution jusqu'alors inhabituelles en spectroscopie atomique.

Les conditions d'excitation dans les tubes à décharge étant beaucoup moins critiques que dans un laser, il est possible dans certains cas de réduire

l'erreur de mesure par exemple en absorption, à basse pression. Le passage de l'amplification à l'absorption a été observé sur plusieurs raies. Nous avons ainsi la possibilité de régler les conditions d'excitation de telle façon que les deux niveaux de la transition soient également peuplés et nous pouvons concevoir une nouvelle méthode de mesure dans laquelle le rapport de l'intensité de deux transitions issues des niveaux considérés donnerait directement le rapport des probabilités de transition .

A l'heure actuelle, nous sommes limités principalement par l'étroitesse de la plage de balayage du laser monochromateur; pour élargir celle-ci il faut nécessairement augmenter l'intervalle entre ordres ce qui dans la plupart des cas nécessite un sélecteur de modes. Il reste que cette méthode ne permettra jamais que le balayage d'un petit domaine spectral autour d'un nombre limité de raies laser. Il faut donc espérer que dans un avenir assez proche, des laser à longueur d'onde variable permettront des performances comparables dans tout le domaine optique.



Je voudrais pour terminer exprimer mon entière gratitude à MM. les Professeurs JACQUINOT et CHABBAL qui m'ont accueilli au laboratoire Aimé-Cotton et qui m'ont proposé cette étude.

Que Mr. le Professeur KASTLER, mon parrain au C. N. R. S. , veuille bien trouver ici l'expression de mes sentiments respectueux et reconnaissants.

Mr. le Professeur BROCHARD m'a dirigé dans ces recherches; il n'a cessé de me prodiguer ses conseils et ses encouragements tout au long de ce travail avec une attention et une compréhension dont je lui suis extrêmement reconnaissant. Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de mes remerciements les plus sincères.

Je voudrais remercier tous les chercheurs et tous les techniciens du laboratoire Aimé-Cotton sans qui ce travail n'aurait pu être mené à bien et en particulier mes camarades du groupe laser : Ph. CAHUZAC, R. DAMASCHINI, J. F. LESPRIT, J. PEREZ et S. LIBERMAN pour les nombreuses, fructueuses et amicales discussions que nous avons eues en commun.

Enfin je voudrais exprimer mes remerciements à l'équipe du laboratoire de Spectrométrie de Masse du C. N. R. S. , à Orsay, qui s'est occupée de la séparation des isotopes du xénon : Tout d'abord, Mr. R. BERNAS, Directeur de Recherche au C. N. R. S. , qui a bien voulu s'intéresser à notre problème, MM. J. CAMPLAN, R. MEUNIER, J-L SARROUY et tous ceux qui ont participé à la séparation et à la purification des isotopes.



- (1) A. JAVAN, E. A. BALLIK et W. L. BOND  
J. Opt. Soc. Amer., 52, n° 1, p. 96, (1962).
- (2) A. SZÖKE et A. JAVAN  
Phys. Rev. Lett., 10, n° 12, p. 521, (1963).
- (3) R. H. CORDOVER, T. S. JASEJA et A. JAVAN  
Appl. Phys. Lett., 7, n° 12, p. 322, (1965).
- (4) A. L. BLOOM et D. L. WRIGHT  
Applied Optics, 5, n° 10, p. 1528, (1966).
- (5) A. D. WHITE  
Appl. Phys. Lett., 10, p. 24, (1967).
- (6) J. BROCHARD et R. VETTER  
Comptes Rendus, 262, p. 681, (1966).
- (7) R. L. BYER, W. E. BELL, E. HODGES et A. L. BLOOM  
J. Opt. Soc. Amer., 55, n° 12, p. 1598, (1965).
- (8) B. D. HOPKINS et G. R. FOWLES  
I. E. E. E. J. of Quant. Electronics, QE-4, n° 12, p. 1013, (1968)
- (9) J. BROCHARD, J. F. LESPRIT et S. LIBERMAN  
Comptes Rendus, 270, p. 600, (1970).
- (10) S. LIBERMAN  
Comptes Rendus, 266, p. 236, (1968).
- (11) R. L. FORK, D. R. HERRIOTT et H. KOGELNIK  
Applied Optics, 3, n° 12, p. 1471, (1964).
- (12) P. W. SMITH  
Applied Optics, 4, n° 8, p. 1038, (1965).
- (13) H. R. SCHLOSSBERG et A. JAVAN  
Phys. Rev. Lett., 17, n° 25, p. 1242, (1966).
- (14) H. J. GERRITSEN et M. E. HELLER  
Applied Optics, Supplement on chemical lasers, p. 73, (1965).

- (15) H. BRUNET  
I. E. E. E. J. of Quant. Electronics, QE-2, n° 9, p. 382, (1966).
- (16) K. SAKURAI et K. SHIMODA  
Japan J. Appl. Phys., 5, n° 10, p. 938, (1966).
- (17) K. SAKURAI, Y. UEDA, M. TAKAMI et K. SHIMODA  
J. Phys. Soc. Japan, n° 21, p. 2090, (1966).
- (18) H. EICHLER  
Z. Angew. Phys. , p. 380, december (1966).
- (19) J. BROCHARD et R. VETTER  
J. de Phys. , n° 3, C2, p. 250-254, (1967).
- (20) P.H. LEE et M.L. SKOLNICK  
Appl. Phys. Lett., 10, n° 11, p. 303, (1967).
- (21) W.G. SCHWEITZER Jr.  
Appl. Phys. Lett., 13 , n° 11, p. 367, (1968).
- (22) R. L. BAYER et J. L. HALL  
Phys. Rev. Lett., 22, n° 1, p. 4, (1969).
- (23) J. A. WHITE  
J. Opt. Soc. Amer., 55, n° 11, p. 1436, (1965).
- (24) R. H. CORDOVER, P. A. BONCZYK et A. JAVAN  
Phys. Rev. Lett., 18, n° 18, p. 730, (1967).
- (25) W. G. SCHWEITZER Jr., M. M. BIRKY et J. A. WHITE  
J. Opt. Soc. Amer., 57, n° 10, p. 1226, (1967).
- (26) B. DECOMPS et M. DUMONT  
Comptes Rendus, 262, p. 1004, (1966).
- (27) B. DECOMPS et M. DUMONT  
J. de Phys., 29, p. 181, 443, (1968).
- (28) M. DUMONT et B. DECOMPS  
Comptes Rendus, 269, p. 191, (1969).
- (29) Ph. CAHUZAC  
Thèse 3ème cycle (1969).

- (30) A.G. FOX et T. LI  
Bell Telephone System, Monograph 3842, (1960).
- (31) G.D. BOYD et H. KOGELNIK  
Bell System Technical Journal, p. 1347, (1962).
- (32) W.E. LAMB Jr.  
Phys. Rev., 134, n° 6 A, p. 1429, (1964).
- (33) B.L. GYORFFY, M. BORENSTEIN et W.E. LAMB Jr.  
Phys. Rev., 169, n° 2, p. 340, (1968).
- (34) J. SEGUIN  
Thèse de Doctorat d'Université, Orsay, (1969).
- (35) M.S. FELD et A. JAVAN  
Phys. Rev., 177, n° 2, p. 540, (1969).
- (36) H. KOGELNIK et T. LI  
Proceedings of the I.E.E.E., 54, n° 10, p. 1312, (1966).
- (37) R. ARRATHOON et A.E. SIEGMAN  
Appl. Phys. Lett., 13, n° 6, p. 197, (1968).
- (38) A.D. WHITE  
Appl. Phys. Lett., 10, n° 1, p. 24, (1967).
- (39) T.P. SOSNOWSKI et W.B. JOHNSON  
I.E.E.E. J. of Quant. Electronics, GE-5, n° 3, p. 151, (1969).
- (40) W.R. BENNETT Jr.  
Applied Optics, Supplement on chemical lasers, p. 3, (1965).
- (41) S. LIBERMAN  
Comptes Rendus, 261, p. 2601, (1965).
- (42) J. BROCHARD, Ph. CAHUZAC et R. VETTER  
Comptes Rendus, 265, p. 467, (1967).
- (43) R. VETTER  
Comptes Rendus, 265, p. 1415, (1967).
- (44) R. VETTER  
Comptes Rendus, 267, p. 1007, (1968).

- (45) R. VETTER  
Comptes rendus, 268, p. 1293, (1969).
- (46) R. VETTER  
Physics letters A. (a paraître).
- (47) R. G. BREENE. The shift and shape of spectral lines.  
New-York : Pergamon press, 1961.
- (48) J. T. DAVIES et J. M. VAUGHAN  
The Astrophysical J. , 37 , n° 4, p. 1302, (1963).
- (49) H. G. KUHN et J. M. VAUGHAN  
Proc. Roy. Soc. , A. 277, p. 297, (1963).
- (50) G. D. BOYD et J. P. GORDON  
Bell Telephone System, Monograph 3843, (1960).
- (51) P. CONNES  
J. de Phys. , 19 , p. 262, (1958).
- (52) W. R. BENNETT, Jr,  
Phys. Rev. , 126 , n° 2, p. 580, (1962).
- (53) C. S. LIU, B. E. CHERRINGTON et J. T. VERDEYEN  
J. of Applied Physics, 40 , n° 9, p. 3556 , (1969).
- (54) R. A. MAC FARLANE  
Phys. rev. , 135, n° 3, p. 543, (1964).
- (55) A. R. STRIGANOV, V. A. KATULIN et V. V. ELISEEV  
Optics and Spectroscopy, n° 12, p. 91 , (1962).
- (56) DUONG-HONG-TUAN  
Thèse, Paris (1965).
- (57) J-M. HELBERT  
Thèse, Paris-Orsay (1969).
- (58) R-J. CHAMPEAU  
Thèse Paris-Orsay (1969).
- (59) D. A. JACKSON et M. COULOMBE  
Comptes Rendus, 268 , p. 146, (1969).

- (60) D. S. HUGHES et C. ECKART  
Phys. Rev., 36, p. 694, (1930).
- (61) A. P. STONE  
Proc. Phys. Soc. 74, p. 424, (1959).
- (62) J. P. VINTI  
Phys. Rev., 56, p. 1120, (1939).
- (63) J. BAUCHE  
Thèse Paris-Orsay (1969).
- (64) J. E. ROSENTHAL et G. BREIT  
Phys. Rev., 41, p. 459, (1932).
- (65) G. RACAH  
Nature, 129, p. 723, (1932).
- (66) H. KOPFERMANN. Kernmomente.  
Akademische Verlagsgesellschaft, Francfort/Main (1956).
- (67) G. BREIT  
Rev. Mod. Phys., 30, p. 507, (1958).
- (68) D. N. STACEY  
Rep. Prog. Phys., 29, p. 171, (1966).
- (69) E. K. BROCH  
Arch. Math. Naturevidenskab, 48, p. 25, (1945).
- (70) A. R. BODMER  
Proc. Phys. Soc., 66, p. 1041, (1953) et 67, p. 622, (1954).
- (71) W. HUMBACH  
Z. f. Physik, n° 133, p. 589, (1952).
- (72) E. E. FRADKIN  
Soviet Physics J. E. T. P., 15, n° 3, p. 550, (1962).
- (73) F. A. BABOUSHKINE  
Soviet Physics J. E. T. P., 17, n° 5, p. 1118, (1963).
- (74) N. J. IONESCO-PALLAS  
Ann. Physik., 8, n° 9, p. 121 (1961).

- (75) J. BLAISE et A. STEUDEL  
Z. f. Physik, 209 , p. 311, (1968).
- (76) W. H. KING  
Proc. Roy. Soc. , A.280, p. 430, (1964).
- (77) S. GERSTENKORN  
Comptes Rendus, 265, p. 1636, (1969).
- (78) H. KOPFERMANN et H. KRÜGER  
Z. f. Physik, 105 , p. 389, (1937).
- (79) V. HORST MEYER  
Helvetica Physica Acta, 26 , n° 7, p. 811, (1953).
- (80) C. E. MOORE  
Circular of the N. B. S. , 467, (1958).
- (81) J. KOCH et E. RASMUSSEN  
Phys. Rev. , 77 , n° 5 , p. 722, (1950).
- (82) S. LIBERMAN  
J. de Phys. , 3 , p. 53, (1969).
- (83) M. WILSON  
Communication personnelle, Orsay (1970).
- (84) P. H. STELSON et L. GRODZINS  
Nuclear Data, Section A, 1 , n° 1, p. 21, (1965).
- (85) E. MARSHALEK, L. W. PERSON et R. K. SHELINE  
Rev. Mod. Phys. , 35 , n° 1, p. 108, (1963).
- (86) L. WILETS, D. L. HILL et K. W. FORD  
Phys. Rev. , 91 , n° 6, p. 1488, (1953).
- (87) J. H. SHAFER  
Thèse . University of Colorado (1970).
- (88) J. BLAISE  
Thèse Paris, Ann. Phys. , 3 , (1958).
- (89) F. TOMKINS et S. GERSTENKORN  
Comptes Rendus, 265 , p. 1311, (1967).

ANNEXE

CALCULS DE  $4P \sum |\psi_{(0)}|_{ns}^2$  A PARTIR DES RESULTATS  
DE M. WILSON

---

5p<sup>5</sup>6s<sup>3</sup>P

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.433,3268 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,6240  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.055,0900  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,4014   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 356,5515     |
| 6s              | : | 20,8539      |

5p<sup>5</sup>6s<sup>1</sup>P

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.433,2797 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,5780  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,9902  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,3619   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 356,9004     |
| 6s              | : | 15,4117      |

$$4P \sum |\psi_{(0)}|_{ns}^2 = 1.397.698,8413$$

$$= 1.397.693,6321$$

5p<sup>5</sup>6p (AV)

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.432,7972 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,4855  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,9198  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,1114   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 355,9385     |

$$= 1.397.674,5048$$

5p<sup>5</sup>7p (AV)

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.433,6851 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,4916  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,9422  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,1482   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 356,1843     |

$$= 1.397.676,9028$$

5p<sup>5</sup>7s<sup>3</sup>P

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.433,2938 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,5943  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.055,0057  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,2337   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 356,3689     |
| 7s              | : | 5,6884       |

$$= 1.397.682,6812$$

5p<sup>5</sup>5d (AV)

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.432,9716 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,5146  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,8787  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,0708   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 354,9624     |

$$= 1.397.672,7962$$

ANNEXE (Suite)

5p<sup>5</sup> 5d<sup>3</sup> P

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.433,3488 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.278,2042  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,7742  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.715,8750   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 352,9320     |

$$4 \sum |\chi_{ns}^{(0)}|^2 = 1.397.670,2684$$

5p<sup>5</sup> 5d<sup>3</sup> F

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.432,9434 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,5136  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,8282  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.715,9748   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 354,0121     |

$$= 1.397.670,5442$$

5p<sup>5</sup> 5d<sup>1</sup> F

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.432,8962 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,5059  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,8974  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,1069   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 355,2989     |

$$= 1.397.673,4106$$

5p<sup>5</sup> 5d<sup>3</sup> D<sup>1</sup> D

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.432,9214 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,5162  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,8876  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,0835   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 355,3507     |

$$= 1.397.673,5188$$

5p<sup>5</sup> 5d<sup>1</sup> P

|                 |   |              |
|-----------------|---|--------------|
| 1s <sup>2</sup> | : | 617.433,3488 |
| 2s <sup>2</sup> | : | 65.277,4554  |
| 3s <sup>2</sup> | : | 13.054,9468  |
| 4s <sup>2</sup> | : | 2.716,1592   |
| 5s <sup>2</sup> | : | 356,1476     |

$$= 1.397.676,1156$$

TABLE DES MATIERES.

pages

CHAPITRE I - INTRODUCTION.

|                                                                                                             |   |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---|
| <u>I - Etude du rayonnement issu du laser</u>                                                               | 3 |
| A - Expérience de battements entre deux laser stabilisés.                                                   | 3 |
| B - Auto exploration d'une cavité laser avec excitation alternée des isotopes.                              | 4 |
| C - Analyse des transitions laser multimodes à l'aide d'un étalon F. P.                                     | 5 |
| D - Expérience de résonance entre les modes de vibration et les sous-niveaux Zeeman d'une transition laser. | 5 |
| <u>II - Absorption ou amplification d'un faisceau laser.</u>                                                | 6 |
| <u>III - Etude du rayonnement de fluorescence.</u>                                                          | 8 |
| A - Analyse directe du rayonnement de fluorescence.                                                         | 8 |
| B - Expérience d'effet Hanle.                                                                               | 9 |

CHAPITRE II - AUTO EXPLORATION D'UNE CAVITE LASER AVEC EXCITATION ALTERNEE DES ISOTOPES.

|                                                                      |    |
|----------------------------------------------------------------------|----|
| <u>I - Principe de l'expérience</u>                                  | 11 |
| <u>II - Dispositif expérimental.</u>                                 | 15 |
| A - Les tubes à décharge.                                            | 15 |
| B - La cavité résonnante .                                           | 16 |
| C - Traitement du signal.                                            | 18 |
| <u>III - Sources d'erreur . Précision des mesures .</u>              | 20 |
| A - Influence du défaut de pureté isotopique.                        | 20 |
| B - Influence des raies ayant un niveau commun avec la raie étudiée. | 21 |
| C - Influence des modes non dominants.                               | 25 |
| D - Influence du dérèglement des tubes .                             | 26 |
| E - Influence des conditions d'excitations des tubes à décharge.     | 28 |
| F - Précision des mesures. Conditions d'enregistrement.              | 29 |
| <u>IV - Mesures de déplacement isotopique.</u>                       | 30 |
| A - Mesures sur l'argon.                                             | 30 |
| B - Mesures sur le xénon.                                            | 30 |
| <u>V - Etude des déplacements par pression.</u>                      | 35 |
| A - Conditions d'enregistrement.                                     | 35 |
| B - Résultat des mesures.                                            | 36 |

# CHAPITRE III - AMPLIFICATION OU ABSORPTION D'UN FAISCEAU LASER PAR UN MILIEU GAZEUX. ANALYSE DIRECTE DES PROFILS DE RAIES

|                                                      |    |
|------------------------------------------------------|----|
| I - Principe de la méthode.                          | 39 |
| II - Dispositif expérimental.                        | 44 |
| A - Laser monochromateur.                            | 44 |
| B - Faisceaux de mesure.                             | 45 |
| C - Faisceaux de référence.                          | 46 |
| III - Conditions d'enregistrement. Sources d'erreur. | 48 |
| A - Balayage du laser, à F-P fixe.                   | 49 |
| B - Balayages simultanés du laser et du F-P.         | 50 |
| C - Mesure de I.                                     | 51 |
| D - Erreurs dues à l'emploi de sources séparées.     | 53 |
| IV - RESULTATS.                                      | 54 |
| V - EFFETS DE DISPERSION DANS UN LASER A GAZ.        | 56 |
| A - Aspect classique.                                | 56 |
| B - Aspect quantique.                                | 60 |
| C - Conséquences pour notre méthode d'analyse.       | 62 |

# CHAPITRE IV - ETUDE DU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE.

|                                                                                |    |
|--------------------------------------------------------------------------------|----|
| I - Effet de masse dans les niveaux d'une configuration électronique.          | 65 |
| A - Effet de Bohr.                                                             | 65 |
| B - Effet spécifique.                                                          | 66 |
| II - Effet de volume dans les niveaux d'une configuration électronique.        | 67 |
| A - Théorie de Broch.                                                          | 68 |
| B - Evaluation de $K(X^0)$ et $\int K(X)$                                      | 70 |
| C - Effet de volume et forme du noyau.                                         | 71 |
| D - Effets d'écran.                                                            | 73 |
| E - Interaction de configurations.                                             | 74 |
| III - Effet isotopique total dans une transition entre deux niveaux.           | 74 |
| IV - Corrélation entre l'effet de volume et l'énergie de liaison par nucléons. | 77 |
| V - Déplacement isotopique dans l'argon.                                       | 78 |
| VI - Déplacement isotopique dans le xénon.                                     | 81 |
| A - Ecarts isotopiques des transitions.                                        | 82 |
| B - Ecarts isotopiques des niveaux.                                            | 82 |
| C - Etude du déplacement isotopique relatif.                                   | 85 |
| D - Etude de l'accroissement d'écart relatif $\Delta$ .                        | 85 |

|                                                                                                            | pages |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| E - Interprétation a partir des valeurs de $ \psi(o)_{ns} ^2$ calculées<br>par la méthode de Hartree-Fock. | 88    |
| F - Effet de volume dans la transition $5p^5_7p[1/2]_1 \longrightarrow 5p^5_7s[3/2]_2$<br>a 3,65 $\mu$ .   | 90    |
| G - Effet spécifique de diverses transitions.                                                              | 95    |
| H - Etude de l'écart (132, 129) .                                                                          | 97    |
| <u>CONCLUSION.</u>                                                                                         | 99    |
| <u>BIBLIOGRAPHIE.</u>                                                                                      | 103   |
| <u>ANNEXE.</u>                                                                                             | 109   |
| <u>TABLE DES MATIERES.</u>                                                                                 | 111   |









